

**Die Verteilung der Stoffaustauschwiderstände  
in verschiedenen Boden- und Füllkörperkolonnen**

**Gottfried Grämer**







DIE VERTEILUNG DER STOFFAUSTAUSCHWIDERSTÄNDE  
IN VERSCHIEDENEN BODEN- UND FÜLLKÖRPERKOLONNEN

Inaugural-Dissertation

zur

Erlangung der Doktorwürde

der

Hohen Naturwissenschaftlichen Fakultät

der

Ludwig-Maximilians-Universität

München



vorgelegt

von

Gottfried Grämer

---

Juni 1959

Berichterstatter: 1. Priv.-Doz. Dr. B. Stuke  
2. Prof. Dr. G.-M. Schwab

Tag der mündlichen Prüfung: ~~2.9. JULI 1959~~

2.9. JULI 1959

Die vorliegende Arbeit wurde im Anschluss an die Diplomarbeit in der Zeit von Mai 1957 bis April 1959 auf Anregung und unter Leitung von

Herrn Priv.-Doz. Dr. B. STUKE

ausgeführt.

Meinem verehrten Lehrer danke ich herzlich sowohl für das der Arbeit stets entgegengebrachte Interesse als auch für die mir während der Zusammenarbeit zuteil gewordene weitere Ausbildung.

Herrn Prof. Dr. G.-M. Schwab danke ich für die mir gegebene Gelegenheit, diese Arbeit im Physikalisch-Chemischen Institut der Universität München durchzuführen.

Herrn Dr. H. Stage danke ich für die uns zur Verfügung gestellten Bodenkolumnen und den Farbenfabriken Bayer AG, insbesondere Herrn Dr. K. Sigwart, für die uns überlassenen Füllkörperkolumnen.



## Inhaltsverzeichnis

|                                                                                  | Seite |
|----------------------------------------------------------------------------------|-------|
| I. Einleitung .....                                                              | 1     |
| II. Grundlagen zur Ermittlung der Trennfähigkeit .....                           | 1     |
| III. Grundlagen zur Bestimmung der Phasenwiderstände .....                       | 4     |
| IV. Druckverlust und Strömungszustand der Dampfphase in Füllkörperkolonnen ..... | 7     |
| V. Experimenteller Teil .....                                                    | 9     |
| 1. Die Apparatur .....                                                           | 9     |
| a. Aufbau der Kolonne .....                                                      | 9     |
| b. Heizung und Isolierung .....                                                  | 9     |
| c. Zusatzgeräte zur Destillation unter vermindertem Druck ..                     | 9     |
| d. Zusatzgeräte zur Destillation mit Inertgaszumischung .....                    | 10    |
| 2. Versuchsdurchführung .....                                                    | 10    |
| a. Destillation unter vermindertem Druck .....                                   | 10    |
| b. Destillation mit Inertgaszumischung .....                                     | 12    |
| 3. Auswertung der Messergebnisse .....                                           | 13    |
| a. Refraktometrische Analyse .....                                               | 13    |
| b. Der Elementartrennfaktor .....                                                | 14    |
| c. Bestimmung des Zumischungsverhältnisses .....                                 | 14    |
| d. Bestimmung des Druckverlustes .....                                           | 15    |
| 4. Versuchsergebnisse .....                                                      | 15    |
| a. Ergebnisse mit Bodenkolonnen .....                                            | 15    |
| b. Ergebnisse mit Füllkörperkolonnen .....                                       | 16    |
| c. Fehlerabschätzung .....                                                       | 17    |
| VI. Diskussion .....                                                             | 30    |
| 1. Ermittlung der Phasenwiderstände von Bodenkolonnen .....                      | 30    |
| 2. Widerstandsverteilung bei Maschendrahringen .....                             | 33    |
| VII. Zusammenfassung .....                                                       | 41    |
| VIII. Literaturhinweise .....                                                    | 42    |



## I. Einleitung

Lange Zeit wurde angenommen, dass die Geschwindigkeit des Stoffaustausches sowohl bei Füllkörper- als auch bei Bodenkolonnen völlig durch den Austauschwiderstand der Dampfphase bestimmt wird.

STUKE<sup>1</sup> wies darauf hin, dass bei Füllkörperkolonnen unter bestimmten Voraussetzungen ein merklicher Flüssigkeitswiderstand vorhanden sein sollte.

SIZMANN und STUKE<sup>2</sup> haben diese Überlegungen mit der von ihnen entwickelten Inertgasmethode bestätigt.

Das wesentliche Merkmal dieser Methode ist, dass der Widerstand der Dampfphase durch ein zugemischtes im betrachteten Temperaturbereich nicht kondensierbares Gas (Inertgas) in bekannter Weise erhöht wird. Vergleicht man die Trennleistung der Kolonne mit und ohne Zumischung, unter sonst gleichen Bedingungen (Temperatur und Belastung), so lässt sich aus vergleichbaren Messungen die Verteilung der Austauschwiderstände ermitteln. Die notwendige Voraussetzung dazu ist, dass sich durch die Zumischung die Verhältnisse in der flüssigen Phase nicht ändern. Für Füllkörperkolonnen ist diese Voraussetzung hinreichend erfüllt<sup>2</sup>.

In der vorliegenden Arbeit wird geprüft, ob dies auch für Bodenkolonnen zutrifft und die Inertgasmethode somit für diesen Kolonnentyp ebenfalls benutzt werden kann.

Ferner werden Füllkörperkolonnen (4x4 mm und 5x5 mm einfach gewickelte V2A-Maschendrahringe) im gesamten Belastungsbereich auf die Widerstandsverteilung hin untersucht.

SIZMANN<sup>3</sup> hat nämlich das überraschende Ergebnis erhalten, dass bei der von ihm gewählten Belastung, 1500 cm<sup>3</sup>/h Rücklauf, der Hauptwiderstand bei den 4x4 mm Maschendrahringen vollkommen auf der Flüssigkeitsseite und bei den 5x5 mm Maschendrahringen völlig auf der Dampfseite liegt.

## II. Grundlagen zur Ermittlung der Trennfähigkeit

Bei Bodenkolonnen kommen der aufsteigende Dampf und die nach unten zurückfließende Flüssigkeit nur auf Einbauten, "den Böden", miteinander in Berührung. Der Dampf strömt dort durch die Flüssigkeit hindurch (grundsätzlicher Unterschied zu Füllkörperkolonnen). Der dabei zwischen den Phasen stattfindende Stoffaustausch bewirkt, dass die leichter flüchtige Komponente am Kopf und die schwerer flüchtige Komponente am unteren Ende der Kolonne angereichert wird. Flüssigkeits- und Dampfkonzentration ändern sich von Boden zu Boden im Normal-



fall diskontinuierlich. Quantitativ wird diese Konzentrationsänderung durch eine Differenzengleichung erfasst.

Der dem Trennverfahren zu Grunde liegende Elementartrenneffekt  $\varphi$  ist für ein Zweistoffsystem definiert durch:

$$\varphi = \frac{y \cdot (1-x)}{(1-y) \cdot x} \quad (1)$$

$y$  und  $1-y$  bedeuten die Gleichgewichtskonzentrationen der leichter bzw. schwerer flüchtigen Komponente der Dampfphase, die zur Flüssigkeitszusammensetzung  $x$  bzw.  $1-x$  gehören ( $x$  und  $y$  Molenbrüche).

Ist der Wert von  $\varphi$  konzentrationsunabhängig (ideale Gemische), so lässt sich die Gesamttrennwirkung  $Q$  einer Kolonne für den stationären Zustand ohne Entnahme (totaler Rücklauf) – d.h. während des Betriebs wird kein angereichertes Produkt entnommen – beschreiben gemäss:<sup>4</sup>

$$Q \equiv \frac{x_o \cdot (1-x)_u}{(1-x)_o \cdot x_u} = \varphi^n \quad (2)$$

Die Indizes  $o$  bzw.  $u$  bezeichnen die Konzentrationen am Kopf bzw. am unteren Ende der Kolonne.

Die Zusammensetzung der Dampfphase ist für totalen Rücklauf gleich der der flüssigen Phase, so dass diese Gleichung ebenso für die  $y$ -Werte gilt.  $n$ , die Zahl der theoretischen Böden, sagt aus, wie oft der Elementartrenneffekt wiederholt worden ist, um die Gesamttrennung  $Q$  zu bewirken. –

Bei den Füllkörpersäulen sind Dampf und Flüssigkeit dauernd in Berührung. Die ablaufende Flüssigkeit bildet auf den Füllkörpern einen Film, an dem der Dampf vorbei strömt. Der Stoffaustausch erfolgt hier kontinuierlich und wird daher durch eine Differentialgleichung beschrieben.

Die Trennfähigkeit wird zweckmässig durch den von CHILTON und COLBURN<sup>5</sup> eingeführten Begriff der Transfer Units (HTU) ausgedrückt. Es gilt:

$$(HTU)_{gd} = H/(TU)_{gd} \quad \text{mit} \quad (TU)_{gd} = \int_{y_u}^{y_o} \frac{dy}{y^* - y} \quad (3)$$

oder

$$(HTU)_{gfl} = H/(TU)_{gfl} \quad \text{mit} \quad (TU)_{gfl} = \int_{x_u}^{x_o} \frac{dx}{x - x^*} \quad (4)$$



Hierin bedeuten  $y$  die mittlere Konzentration in der Dampfphase,  $y^*$  die Gleichgewichtskonzentration des Dampfes zur Flüssigkeit  $x$ . Entsprechendes gilt für  $x$  bzw.  $x^*$ .

$(TU)_{gd}$  bzw.  $(TU)_{gfl}$  bezeichnen die Anzahl der sog. Transfer Units.  $(HTU)_{gd}$  gibt die Höhe einer Transfer Unit an, unter der Voraussetzung, dass der Austauschwiderstand allein auf der Dampfseite liegt.  $(HTU)_{gfl}$  gilt dann, wenn der Widerstand sich ganz auf der Flüssigkeitsseite befindet.

$H$  bedeutet die Höhe der Füllkörperschüttung in der Kolonne. —

In die Definition der Bodenzahl (Gleichung 2) und die der Transfer Units (Gleichungen 3 und 4) gehen nur die Endwerte der Konzentrationsverschiebung ein, nicht der Weg (diskontinuierlich oder kontinuierlich) auf dem sie entstanden sind (siehe Gleichungen 2a, 3a und 4a <sup>+)</sup> . Man kann daher durch Definition den Begriff der Bodenzahl auf die Füllkörperkolonnen und den der Transfer Units auf die Bodenkolonnen übertragen. Man benutzt dann als Mass für die Wirkung des einen Kolonnentyps jeweils das charakteristische Leistungsmass des anderen.

Für den Grenzfall eines verschwindenden Elementartrenneffektes ( $\varphi \rightarrow 1$ ) werden  $n$ - und  $(TU)$ -Werte identisch. Das ist bereits qualitativ einzusehen, denn unter dieser Voraussetzung ändert sich auch in Bodenkolonnen die Zusammensetzung der Phasen kontinuierlich.

In welchem Ausmass Bodenzahl und Anzahl der Transfer Units einer Kolonne bei  $\varphi \neq 1$  voneinander abweichen, zeigen folgende für totalen Rücklauf gültige Gleichungen.

$$(TU)_{gd} = n \cdot \frac{g}{m+1} \quad (5a)$$

<sup>+)</sup>  Gleichung 2a ist die nach  $n$  aufgelöste Gleichung 2.

Gleichung 3a und 4a stellen die unter Voraussetzung eines idealen Gemisches mit  $\varphi - 1 \ll 1$  bei totalem Rücklauf integrierten Gleichungen 3 und 4 dar.

$$n = \frac{\ln \frac{x_o \cdot (1-x_u)}{(1-x_o) \cdot x_u}}{\ln \varphi} \quad (2a)$$

$$(TU)_{gd} = \ln \frac{1-x_u}{1-x_o} + \frac{1}{\varphi-1} \ln \frac{x_o \cdot (1-x_u)}{(1-x_o) \cdot x_u} \quad (3a)$$

$$(TU)_{gfl} = \ln \frac{x_o}{x_u} + \frac{1}{\varphi-1} \ln \frac{x_o \cdot (1-x_u)}{(1-x_o) \cdot x_u} \quad (4a)$$



$$(TU)_{gfl} = n \frac{g \cdot m}{m+1} \quad (5b)$$

mit

$$g = \frac{(\varphi + 1) \cdot \ln \varphi}{(\varphi - 1)} \quad (6)$$

mit  $m$  als mittlerer Neigung der Gleichgewichtskurve im betrachteten Destillationsgebiet.

Für  $\varphi \rightarrow 1$  geht  $m \rightarrow 1$  und nach Gleichung 6  $g \rightarrow 2$ . Dann ist gemäss Gleichung 5a und 5b

$$(TU)_{gd} = (TU)_{gfl} = n \quad (7)$$

In Tabelle 1 ist  $g$  für einige  $\varphi$ -Werte wiedergegeben.

Tabelle 1  
Umrechnungsfaktor zwischen Bodenzahl und Transfer Units

| $\varphi$ | $g$   |
|-----------|-------|
| 1.001     | 2.000 |
| 1.01      | 2.000 |
| 1.11      | 2.002 |
| 2.0       | 2.128 |

Für  $\varphi = 1.11$  (Wert für das verwendete Testgemisch) ist die Abweichung von  $g = 2.0$  vernachlässigbar klein.

### III. Grundlagen zur Bestimmung der Phasenwiderstände

Bei Füllkörperkolonnen lässt sich der Begriff des Stoffaustauschwiderstandes, der auch bei Bodenkolonnen von Bedeutung ist, in übersichtlicher Weise definieren. Er ist ein Mass für die Geschwindigkeit des Stofftransportes in der betrachteten Phase, senkrecht zur Gegenstrombewegung. Als treibende Kraft für den Stofftransport ist dabei die Konzentrationsdifferenz zwischen dem Inneren der Phase und ihrer Grenzfläche anzusehen.

Im einfachsten Fall liegt der Stoffaustauschwiderstand ganz in einer Phase. Der Stofftransport in der anderen Phase erfolgt dann so schnell, dass dort überall im betreffenden Querschnitt nahezu die gleiche Konzentration herrscht. Für diese Grenzfälle stellen die  $(HTU)_{gd}$ - bzw.  $(HTU)_{gfl}$ -Werte (Gleichungen 3 und 4) ein geeignetes Mass des Phasenwiderstandes<sup>5</sup> dar.



Sie haben die Dimension einer Länge und geben die Höhe eines Kolonnenstücks an, das gerade die Wirkung einer Transfer Unit hat. Je länger dieses Stück ist, um so schlechter ist der Stoffaustausch zwischen den Phasen. Es ist daher angebracht, den Stoffaustauschwiderstand durch diese Grössen zu definieren.

Im allgemeinen muss der Stoffaustauschwiderstand beider Phasen berücksichtigt werden. Die  $(HTU)_{gd}$ - bzw.  $(HTU)_{gfl}$ -Werte sind in diesem Fall als Rechengrössen aufzufassen;  $(HTU)_{gd}$  setzt sich folgendermassen aus den Einzelwiderständen der Phasen zusammen:

$$(HTU)_{gd} = (HTU)_d + m \frac{V}{R} (HTU)_{fl} \quad (8)$$

Für  $(HTU)_{gfl}$  gilt eine entsprechende (identische) Gleichung.

R bzw. V bedeuten die molare Rücklauf- bzw. Dampfmenge, die in der Zeiteinheit durch den Kolonnenquerschnitt strömt.  $(HTU)_d$  ist der Widerstandsanteil der Dampfphase und  $(HTU)_{fl}$  der der flüssigen Phase.

Eine direkte Bestimmung der Phasenwiderstände ist nicht möglich. Man kann sie aber indirekt aus Gleichung 8 erhalten, wenn man  $(HTU)_{gd}$  unter verschiedenen Bedingungen nach Gleichung 3 ermittelt. —

Nach der Inertgasmethode wird der Austauschwiderstand der Dampfphase durch die Inertgaszumischung in bekannter Weise erhöht. (Siehe Bild 1, in dem das Verhältnis  $(HTU)'_d / (HTU)_d$  für Stickstoff- und Wasserstoffzumischung abhängig vom Zumischungsverhältnis  $\nu$  für laminare und turbulente Dampfströmung dargestellt ist.)<sup>6</sup> Unter der bereits genannten Voraussetzung, dass das hydrodynamische Verhalten der Flüssigkeitsphase durch die Inertgaszumischung nicht verändert wird, lässt sich dann aus Gleichung 8, einmal ohne, einmal mit Zumischung formuliert, die Widerstandsverteilung auf die Phasen berechnen.

Für den relativen Anteil des Dampf Widerstandes am Gesamtwiderstand ergibt sich:

$$\frac{(HTU)_d}{(HTU)_{gd}} = \frac{\Gamma_{gd} - 1}{\Gamma_d - 1} \quad (9)$$

In dieser Gleichung bedeuten:

$$\Gamma_{gd} \equiv (HTU)'_{gd} / (HTU)_{gd} \quad (9a)$$

$$\Gamma_d \equiv (HTU)'_d / (HTU)_d = \left( \frac{\rho \cdot \eta'}{\rho' \cdot \eta} \right)^{0.38} \left( \frac{D}{D'} \right)^{0.6} \quad (9b)$$

für turbulente Dampfströmung

<sup>x)</sup> Definition des Zumischungsverhältnisses  $\nu$  siehe:



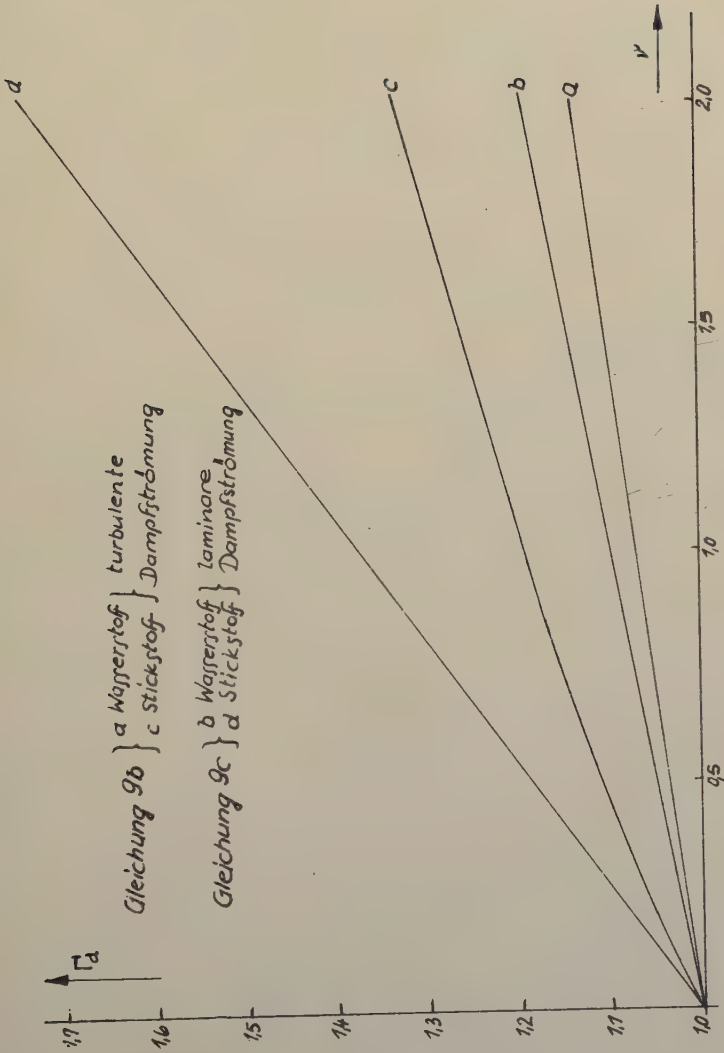


Bild 1 Relative Änderung des Dampf Widerstandes bei verschiedener Inertgaszumischung



$$\sqrt{d} \equiv (HTU)_d' / (HTU)_d = \frac{D}{D'} \quad (9c)$$

für laminare Dampfströmung

Die gestrichenen Werte beziehen sich auf die Inertgaszumischung.

$\rho$  und  $\rho'$  bezeichnen die Dichten,  $\eta$  und  $\eta'$  die Zähigkeiten,

D und D' die Diffusionskonstanten.

Führt man in Gleichung 9a statt  $(HTU)_{gd}$  gemäss Gleichung 3 die zugehörigen  $(TU)_{gd}$ -Werte ein, so gilt, unter Berücksichtigung von Gleichung 5a:

$$\sqrt{gd} \equiv \frac{(HTU)_{gd}'}{(HTU)_{gd}} = \frac{(TU)_{gd}}{(TU)_{gd}} = \frac{n}{n'} \quad (10a)$$

Dies in Gleichung 9 eingesetzt, ergibt:

$$\frac{(HTU)_d}{(HTU)_{gd}} = \frac{n/n' - 1}{\sqrt{d} - 1} \quad (10)$$

Die Gleichung 10 liefert somit das Phasenwiderstandsverhältnis für Füllkörper- und Bodenkolonnen bei totalem Rücklauf, wenn die Trennleistung in theoretischen Bodenzahlen gemessen wird.

Da sich in Gleichung 10 das Verhältnis der Messgrössen  $n/n'$  nicht sehr von 1 unterscheidet, wirkt die experimentelle Schwankung der  $n$ - bzw.  $n'$ -Werte im ungünstigsten Fall stark auf das Verhältnis  $(HTU)_d / (HTU)_{gd}$ . Der Wert der Methode wird dadurch jedoch nicht wesentlich beeinträchtigt, da in erster Linie interessiert, ob der Austauschwiderstand entweder ganz auf einer Seite liegt, oder beide Phasen stärker beteiligt sind.

#### IV. Druckverlust und Strömungszustand der Dampfphase in Füllkörperkolonnen

Als Druckverlust  $\Delta p$  wird der Druckunterschied zwischen Destillierblase und Kopf der Kolonne bezeichnet, hervorgerufen durch den hydrodynamischen Widerstand in der Kolonne. Er ist von den Stoffeigenschaften der Dampfphase (Dichte  $\rho$  und Zähigkeit  $\eta$ ), sowie von der Dampfgeschwindigkeit  $v$ , der Höhe der Füllkörperschicht  $H$  und der Art der Füllkörperschüttung (näherungsweise beschrieben durch den sog. hydraulischen Durchmesser  $D$ ) abhängig, wenn man den gegenseitigen Einfluss von Dampf- und Flüssigkeitsphase aufeinander vernachlässigt.  $D$  ist definiert gemäss:  $D = V_S - (V_K + V_F)/O$ .



Hierin sind:  $V_S$  das Volumen der leeren Kolonne,  $V_K$  das Volumen der unbenetzten Füllkörper,  $V_F$  der Flüssigkeitsinhalt der Kolonne bei der Destillation und  $O$  die Oberfläche der Füllkörper.

Die Strömung der Dampfphase kann entweder laminar oder turbulent erfolgen. Bei laminarer Dampfströmung ist bei geringen Geschwindigkeiten kein Einfluss der Dampfdichte, bei turbulenter Dampfströmung kein Einfluss der Dampfzähigkeit auf den Druckverlust zu erwarten.

Für laminare Dampfströmung gilt aus dimensionsanalytischen Gründen:

$$L \left( \frac{\Delta p \cdot D}{v \cdot \eta}, \frac{H}{D} \right) = 0 \quad (11)$$

Der Zusammenhang zwischen beiden Kennzahlen lässt sich bekanntlich häufig mit guter Näherung durch das Produkt der Kenngrößen beschreiben.

$$\Delta p = \gamma \cdot \frac{\eta \cdot v}{D} \cdot \left( \frac{H}{D} \right)^\beta \quad (12)$$

$\gamma$  und  $\beta$  sind empirisch zu ermittelnde Konstanten. Bei konstantem Destillationsdruck in gegebener Kolonne bleiben  $\eta$  und  $H$  konstant. Erfolgt keine Beeinflussung der flüssigen Phase durch die Dampfströmung, so ist auch  $D$  konstant. Fasst man für diesen Fall  $H$ ,  $D$ ,  $\eta$  und  $\gamma$  in  $\gamma'$  zusammen, so folgt:

$$\Delta p = \gamma' \cdot v \quad (13)$$

Analog gilt für turbulente Dampfströmung:

$$T \left( \frac{\Delta p}{\varphi \cdot v^2}, \frac{H}{D} \right) = 0 \quad (14)$$

Daraus ergibt sich mit  $\delta'$  als entsprechender Konstante:

$$\Delta p = \delta' \cdot v^2 \quad (15)$$

Stellt man bei der Messung des Druckverlustes fest, dass dieser sich proportional zu  $v^1$  (oder einem Exponenten in der Nähe von 1) verändert, so kann man also auf laminare Strömung schliessen, während Proportionalität zu  $v^2$  (oder einem Exponenten in der Nähe von 2) turbulente Dampfströmung bedeutet.

In doppelt-logarithmischer Darstellung:  $\log \Delta p$  gegen  $\log v$  (oder gegen  $\log R$ , da  $v = \alpha \cdot R$  und  $\alpha =$  konstant unter den betrachteten Verhältnissen) stellt das Steigungsmass der dabei auftretenden Geraden den Exponenten von  $v$  dar.



## V. Experimenteller Teil

### 1. Die Apparatur

Die Versuchsanordnung ist schematisch in Bild 2 dargestellt. In der folgenden kurzen Übersicht werden die einzelnen Bauelemente erläutert.

#### a. Aufbau der Kolonne

1. Destillationskolben mit einem Betriebsinhalt von 1.5 Liter.
2. Thermometer zur Messung der Siedetemperatur der Flüssigkeit.
3. Rücklaufmesser zur Ermittlung der Belastung. Dieser hat ein geeichtes Messvolumen von 10 ml.
4. Messpunkt für die Gemischzusammensetzung am unteren Ende der Kolonne, und für die Temperaturen des Dampfes und des Isoliermantels (11).
5. Kolonne
6. Messpunkt für die Gemischzusammensetzung und die Temperaturen am oberen Ende der Kolonne.
7. Wasserkühler (Kühlwassertemperatur ca.  $10^{\circ}\text{C}$ )
8. Isolierter Tieftemperaturkühler, der mit einer Kochsalzlösung von ca.  $-10^{\circ}\text{C}$  gespeist wird.
9. Differentialmanometer zur Bestimmung des Druckverlustes während der Destillation.

#### b. Heizung und Isolierung

10. Elektrische Heizung, die mit einem Regeltransformator stufenlos eingestellt werden kann.
11. Zusatzheizung, um eine teilweise Kondensation des Dampfes vor dem Einströmen in die Kolonne zu vermeiden. Die Einstellung der Heizung wird mit dem Thermometer unter (4) kontrolliert.
12. Heizbarer Isoliermantel der Kolonne (5). Dieser besteht aus zwei Glasrohren, die an ihren beiden Enden von je einer Abdeckplatte gehalten werden. Auf das innere Rohr ist ein Heizdraht aufgewickelt. Die Heizleistung ist regelbar. Der äussere Glasmantel trägt eine 4 cm dicke Glaswollisolierung.

Diese Anordnung dient dazu, die Kolonne adiabatisch zu machen.

13. Thermometer zur Kontrolle der Temperatur im Isoliermantel.
14. Zusatzheizung mit Isoliermantel, um eine Kondensation des Dampfes vor Erreichen der Messtelle (6) zu vermeiden.

#### c. Zusatzgeräte zur Destillation unter vermindertem Druck

15. Kontaktmanometer zur Einstellung des Druckes in der Apparatur.



16. Magnetventil, das über ein Relais von (15) gesteuert wird.
17. Pufferflasche mit einem Volumen von 5 Liter. Diese dämpft die Regelschwankungen.
18. Vakuumpumpe
19. Differentialmanometer zur Bestimmung des Druckes in der Apparatur.

#### d. Zusatzgeräte zur Destillation mit Inertgaszumischung.

20. Gaseinleitungsrohr, das knapp über dem Boden der Destillierblase endet.
21. Sicherheitsflasche, die bei Störungen übertretende Flüssigkeit auffängt.
22. Gastrockner mit Calciumchlorid gefüllt.
23. Überdruckventil zum Regeln der durchströmenden Gasmenge.
24. Anschluss an die Gasvorratsflasche.
25. Gasuhr mit Thermometer zur Bestimmung der durchgeleiteten Gasmenge und deren Temperatur.
26. Anschluss zum Abzug.
27. Absperrhähne

#### 2. Versuchsdurchführung

Die Trennfähigkeiten der verwendeten Kolonnen werden stets bei totalem Rücklauf bestimmt.

##### a. Destillation unter vermindertem Druck (Bild 2).

Zuerst wird die Kolonne mittels der Heizungen (10, 11, 12, 14) auf die erforderliche Betriebstemperatur gebracht. Am Kontaktmanometer (15) erfolgt die Einstellung auf den gewünschten Unterdruck  $P$  in der Apparatur, den die Ölpumpe (18) mittels des Magnetventils (16) konstant hält. Zur Kontrolle dieses Druckes dient das Differentialmanometer (19), das die Druckdifferenz  $\Delta P$  gegenüber dem äusseren Luftdruck  $B$  anzeigt.  $B$  wird mit einem geeichten Dosenbarometer gemessen.

Es gilt also für den Druck in der Kolonne:

$$P = B - \Delta P \quad (16)$$

Nach Erreichen des stationären Zustandes, d.h. wenn mehrfache Probeentnahme zeigt, dass sich die Konzentrationsverteilung in der Kolonne nicht mehr ändert, beginnt der eigentliche Messvorgang.

Die Belastung ergibt sich aus der Zeit, in der sich das geeichte Volumen von 10 ml des Rücklaufmessers (3) auffüllt.



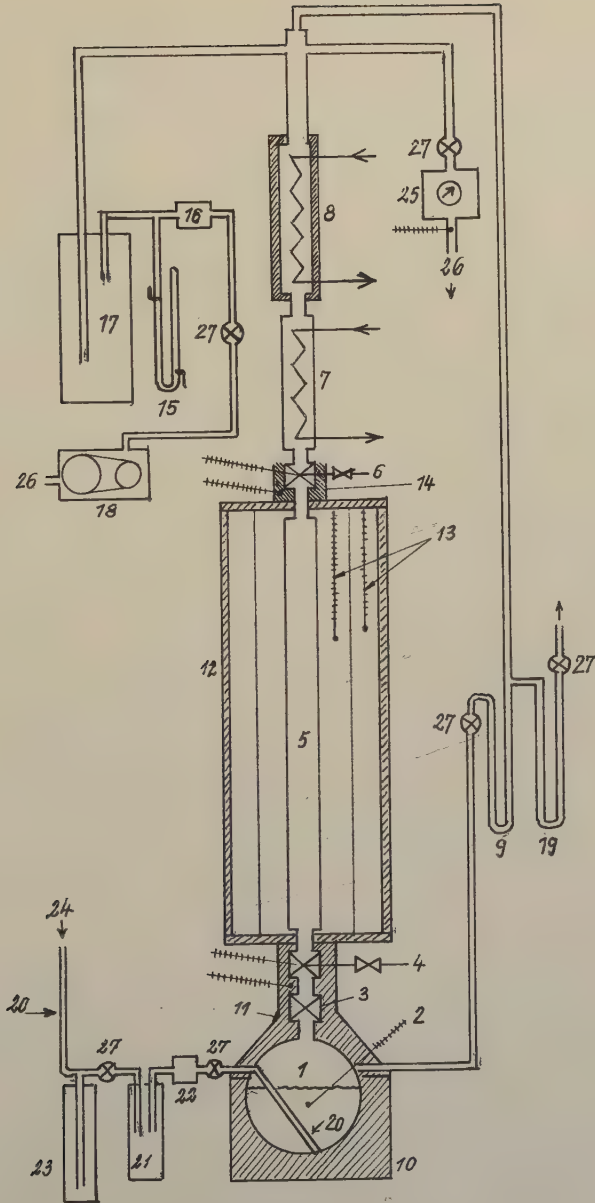


Bild 2 Versuchsanordnung



Dann werden an allen Thermometern die Temperaturen abgelesen, darauf an den Stellen (4) und (6) je 0.1 - 0.2 ml Testgemischproben entnommen und deren Zusammensetzung mit einem Refraktometer bestimmt. An dem Manometer (9) wird der Druckverlust festgestellt.

In Abständen von je einer Stunde erfolgen noch 3 weitere Messungen in derselben Weise. Diese vier Messungen dürfen in ihren Ergebnissen nicht wesentlich voneinander abweichen, wenn der Rücklauf sich nicht verändert hat. Sie bestätigen dann den stationären Zustand.

Bei Messungen an Bodenkolonnen kann nach Erreichen der Betriebstemperatur sofort ein bestimmtes Rücklaufverhältnis eingestellt werden. Der stationäre Zustand ist nach 2-3 Stunden erreicht.

Bei Füllkörperkolonnen muss, wie Vorversuche ergaben, vor Beginn des eigentlichen Destillationsbetriebes eine Stunde geflutet werden, um zuverlässige Ergebnisse zu erhalten.

Unter Fluten versteht man das Aufstauen des Rücklaufs in der Kolonne bei grosser Dampfgeschwindigkeit bis die ganze Füllkörperschicht mit Flüssigkeit aufgefüllt ist. Es bezweckt die vollständige Benetzung der Füllkörper, die zur Erzielung reproduzierbarer Messungen notwendig ist.

Danach wird die Heizleistung langsam verringert bis sich innerhalb etwa einer halben Stunde der Rücklauf einstellt, bei dem die Messungen erfolgen sollen. Der stationäre Zustand ist nach weiteren 3-4 Stunden erreicht.

#### b. Destillation mit Inertgaszumischung.

Der entscheidende Unterschied zu den unter (a) beschriebenen Versuchen, unter vermindertem Druck, ist der, dass jetzt der Gemischpartialdruck durch die Inertgaszumischung eingestellt wird. Gemischpartialdruck und Inertgasdruck im Inneren der Kolonne sind zusammen dem äusseren Luftdruck gleich.

Der Rücklauf wird auf denselben Wert, wie bei dem entsprechenden Versuch ohne Zumischung einreguliert. Ist der Inertgaspartialdruck der Druckdifferenz  $\Delta P$  (Gleichung 16) ohne Zumischung gleich, so hat der Gemischpartialdruck denselben Wert, wie der Dampfdruck ohne Zumischung. Das bedeutet, dass sich auch die Siedetemperaturen mit und ohne Zumischung entsprechen.

Die Schwankungen des Luftdrucks B fallen im allgemeinen in den Bereich der Einstellgenauigkeit des Inertgaspartialdrucks.

Bei der Destillation mit Inertgaszumischung wird noch zusätzlich der Tieftemperaturkühler (8) in Betrieb genommen, um die Verluste an Testgemisch bei Dauerbetrieb herabzusetzen. Bei dieser Temperatur ( $-10^{\circ}\text{C}$ ) ist der Dampfdruck



der Flüssigkeit im Kondensator hinreichend gering, so dass die durch den Inertgasstrom aus der Kolonne herausgespülte Gemischmenge vernachlässigt werden kann.

Der Messvorgang erfolgt wie unter (a) beschrieben.

Bei Bodenkolonnen kann nach Erreichen der Betriebstemperatur sofort Inertgas eingeleitet und die Inertgaszumischung auf den eingestellten Rücklauf abgestimmt werden.

Bei Füllkörperkolonnen muss wiederum zunächst unter vermindertem Druck geflutet werden. In die geflutete Kolonne wird dann Inertgas eingeleitet, und zwar so viel, dass das Fluten durch die Druckerhöhung (vorübergehendes Aufhören des Siedens) nicht unterbrochen wird. Dann wird langsam auf den gewünschten Rücklauf eingestellt unter gleichzeitiger, entsprechender Verringerung der durchströmenden Inertgasmenge. Diese Verringerung sowohl des Rücklaufs als auch der Inertgasmenge muss vorsichtig erfolgen, da sonst gegebenenfalls zu wenig Testgemischdampf in den Kondensator gelangt und der auf den Füllkörpern ablaufende Flüssigkeitsfilm abreisst.

### 3. Auswertung der Messergebnisse.

#### a. Refraktometrische Analyse.

Als Testgemisch wurde Chlorbenzol-Äthylbenzol verwendet. Die Daten für dieses Gemisch stammen teils von HAWKINS und BRENT<sup>7</sup>, teils aus eigenen Messungen.

Die Siedetemperaturen der reinen Komponenten betragen bei 760 mm Hg:

Chlorbenzol: 131.66°C

Äthylbenzol: 136.19°C

Chlorbenzol reichert sich als flüchtigere Komponente am Kopf der Kolonne an.

Die Brechungsindizes für Natrium-D-Licht bei 25°C betragen:

Chlorbenzol: 1.5221

Äthylbenzol: 1.4933

Die Zusammensetzung  $x$  (Molenbruch für Chlorbenzol) und der Brechungsindex  $n_D^{25}$  des Gemisches sind durch folgende empirisch gewonnene Gleichung miteinander verknüpft:

$$x = 1/[1 + 0.909 (1.5221 - n_D^{25})/(n_D^{25} - 1.4933)] \quad (17)$$

Mit dieser Gleichung werden, mittels der Brechungsindizes, die Konzentrationen der an den Messpunkten (4) und (6) entnommenen Gemische bestimmt. Die Zahl der theoretischen Böden ergibt sich dann aus Gleichung 2a.



### b. Der Elementartrennfaktor.

Für den Elementartrennfaktor  $\varphi$  geben HAWKINS und BRENT folgende Werte an:

|           |       |                  |
|-----------|-------|------------------|
| 760 mm Hg | 1.102 | (Sdp. ca. 134°C) |
| 300 mm Hg | 1.116 | (Sdp. ca. 100°C) |
| 20 mm Hg  | 1.123 | (Sdp. ca. 35°C)  |

Er ist unabhängig von der Konzentration, d.h. die Mischung verhält sich ideal.

Die für die Destillationstemperaturen der vorliegenden Arbeit zutreffenden  $\varphi$ -Werte wurden aus den oben genannten durch graphische Interpolation bestimmt (siehe Tabelle 2).

Tabelle 2

Elementartrennfaktor  $\varphi$  für verschiedene Temperaturen bzw. Zumischungsverhältnisse

$v$  bedeutet das unter (c) definierte Zumischungsverhältnis, mm Hg gibt den dazugehörigen Gemischpartialdruck an, °C ist die Siedetemperatur unter diesen Bedingungen.

| $v$  | mm Hg | °C  | $\varphi$ |
|------|-------|-----|-----------|
| 0.0  | 720   | 131 | 1.103     |
| 0.25 | 576   | 123 | 1.107     |
| 0.5  | 480   | 116 | 1.110     |
| 1.0  | 360   | 107 | 1.113     |
| 1.5  | 288   | 99  | 1.115     |
| 2.0  | 240   | 95  | 1.117     |

### c. Bestimmung des Zumischungsverhältnisses.

Die durchströmende Inertgasmenge wird mit dem Gaszähler (25) in Liter gemessen. Die Gasuhr zeigt das durchgesetzte Volumen bezogen auf die jeweilige Gastemperatur und den Barometerdruck an. — Zur Umrechnung in das Geschwindigkeitsmass, Molzahl pro Zeiteinheit, wird das allgemeine Gasgesetz verwendet.

Die Berechnung der Dampfgeschwindigkeit (ebenfalls Molzahl pro Zeiteinheit) erfolgt, da totaler Rücklauf vorliegt, aus der in cm<sup>3</sup>/h gemessenen Rücklaufmenge (R).

Für das dazu nötige Molvolumen gilt, da es sich um ein ideales Gemisch handelt:



$$V_M = \frac{M_2}{\rho_2} + x_u \left( \frac{M_1}{\rho_1} - \frac{M_2}{\rho_2} \right) \quad (18)$$

Hierin bedeuten:

$M_1$  (Molgewicht Chlorbenzol) = 112.6

$M_2$  (Molgewicht Äthylbenzol) = 106.2

$\rho_1$  (Spez. Gew. Chlorbenzol) = 1.02 für 105°C 1.00 für 120°C

$\rho_2$  (Spez. Gew. Äthylbenzol) = 0.78 0.75 für 120°C

$x_u$  ist der Molenbruch für Chlorbenzol am unteren Testpunkt (siehe Gleichung 17).

Das Zumischungsverhältnis ist definiert durch:

$$v = \frac{\text{Mole Inertgas}}{\text{Zeit}} : \frac{\text{Mole Testgemischdampf}}{\text{Zeit}} \quad (19)$$

#### d. Bestimmung des Druckverlustes.

Die Messung des Druckverlustes erfolgt mit dem Differentialmanometer (9).

Es ist mit Chlorbenzol gefüllt. Das spezifische Gewicht von Chlorbenzol bei Zimmertemperatur beträgt: 1.1.

Der wahre Druckverlust  $\Delta p$  ergibt sich gemäss:

$$\Delta p = 1.1 \cdot \Delta h \quad (20)$$

$\Delta h$  ist die Höhendifferenz zwischen den beiden Menisken des Manometers.

#### 4. Versuchsergebnisse.

##### a. Ergebnisse mit Bodenkolonnen.

Für drei Bodenkolonnen (Siebbodenkolonne mit 21, Glockenbodenkolonne und Dampfprallbodenkolonne mit je 15 eingebauten Böden) wurden Trennfähigkeit und Druckverlust unter vermindertem Druck (360 mm Hg), sowie mit Stickstoff- bzw. Wasserstoffzumischung (Gesamtdruck 720 mm Hg, Zumischungsverhältnis  $v = 1.0$ ) abhängig von der Belastung bestimmt.

Die Bilder 3-8 geben die Messergebnisse wieder.

|                            |   |                                                   |
|----------------------------|---|---------------------------------------------------|
| Bild 3 Siebbodenkolonne    | } | theoretische Bodenzahl $n$ gegen<br>Belastung $R$ |
| Bild 4 Prallbodenkolonne   |   |                                                   |
| Bild 5 Glockenbodenkolonne |   |                                                   |



Bild 6 Siebbodenkolonne  
Bild 7 Prallbodenkolonne  
Bild 8 Glockenbodenkolonne

} Druckverlust  $\Delta p$  gegen Belastung R

### b. Ergebnisse mit Füllkörperkolonnen.

Die Füllkörperkolonne hatte einen inneren Durchmesser von 3 cm und eine Schütthöhe von 100 cm.

Als Füllkörper dienten 4x4 mm bzw. 5x5 mm einfach gewickelte V2A-Maschendrahringe.

Es wurde gemessen:

In der ersten Versuchsreihe Trennfähigkeit und Druckverlust bei gleichem Destillationsdruck (480 mm Hg) bzw. Zumischungsverhältnis (Stickstoffzumischung  $v = 0.5$ ) abhängig von der Belastung,  
in der zweiten Versuchsreihe Trennfähigkeit bei konstanter Belastung abhängig vom Destillationsdruck bzw. Zumischungsverhältnis,  
in der dritten Versuchsreihe Trennfähigkeit der 5x5 mm Maschendrahringe mit Wasserstoffzumischung ( $v = 0.5$ ) bei 3 verschiedenen Belastungen (siehe Bild 10).

Die Bilder 9-14 geben die Ergebnisse wieder.

#### 1. Versuchsreihe:

Bild 9 4x4 mm Maschendrahringe }  
Bild 10 5x5 mm Maschendrahringe } theor. Bodenzahl gegen Belastung

Bild 11 und 12 Druckverluste zu Bild 9 bzw. 10.

#### 2. Versuchsreihe:

Bild 13 4x4 mm Maschendrahringe  
theor. Bodenzahl für 800 cm<sup>3</sup>/h Rücklauf gegen Zumischungsverhältnis

Bild 14 5x5 mm Maschendrahringe  
theor. Bodenzahl für 800 und 1600 cm<sup>3</sup>/h Rücklauf gegen Zumischungsverhältnis

Es bedeuten:

- = Destillation unter vermindertem Druck
- x = Destillation mit Stickstoffzumischung
- Δ = Destillation mit Wasserstoffzumischung



### c. Fehlerabschätzung.

Die eingezeichneten Messpunkte in den graphischen Darstellungen sind bereits Mittelwerte, die aus 3-5 Einzelmessungen bestimmt wurden.

Bei den drei Bodenkolonnen beträgt die Abweichung der gemessenen Bodenzahlen von den Kurven im Durchschnitt bis 1%. Die maximale Abweichung macht 3% aus.

Nicht ganz so günstig sind die Verhältnisse bei den Füllkörpern. Die durchschnittlichen Abweichungen der gemessenen Bodenzahlen von den Kurvenwerten liegen hier bei 2%. Die maximale Abweichung steigt bis zu 6% an.

Zur Ausrechnung der Widerstandsverteilung wurden die Kurvenwerte verwendet.

Die Streuung der  $(HTU)_d/(HTU)_{gd}$ -Werte macht für die Bodenkolonnen bei Stickstoffzumischung bis zu  $\pm 0.06$  und bei Wasserstoffzumischung bis zu  $\pm 0.16$  aus.

Bei den Füllkörperkolonnen sind die Schwankungen je nach dem verwendeten Zumischungsverhältnis verschieden. Sie betragen für:

|                      |                   |
|----------------------|-------------------|
| $v = 0.25$ bis $0.3$ | $\pm 0.3$         |
| $v = 0.5$            | bis zu $\pm 0.2$  |
| $v = 1.0$            | bis zu $\pm 0.14$ |
| $v = 1.5$ bis $2.0$  | bis zu $\pm 0.1$  |



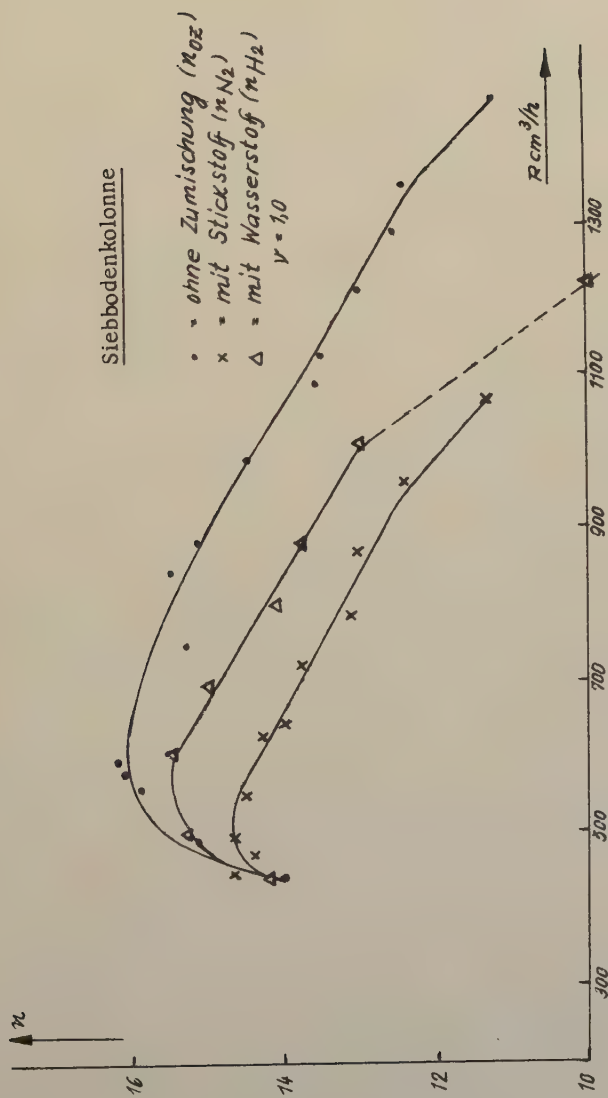


Bild 3 Theoretische Bodenzahl mit und ohne Inertgaszumischung bei verschiedener Belastung



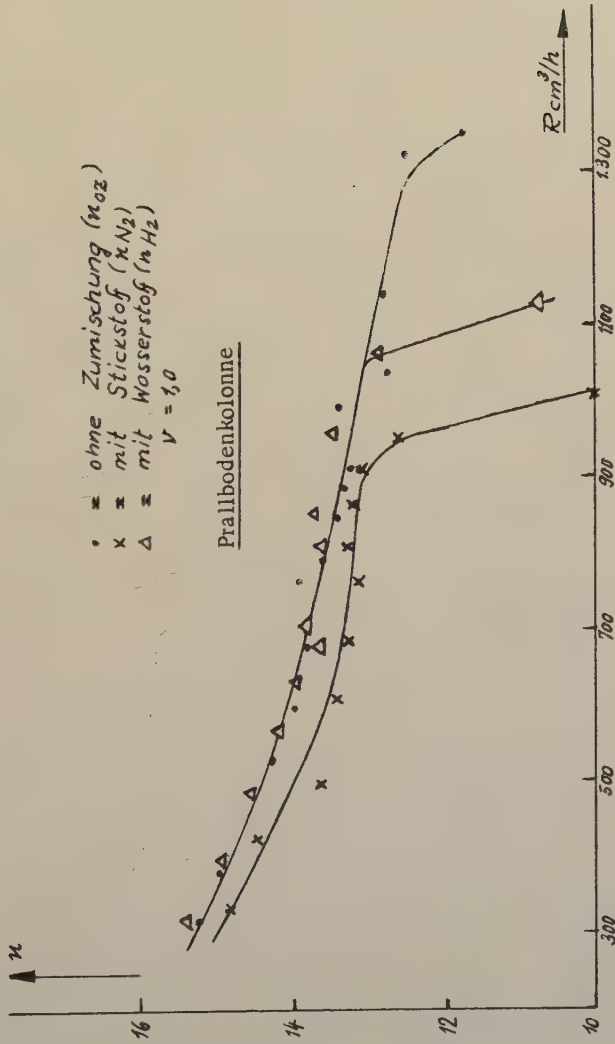


Bild 4 Theoretische Bodenzahl mit und ohne Inertgaszumischung bei verschiedener Belastung



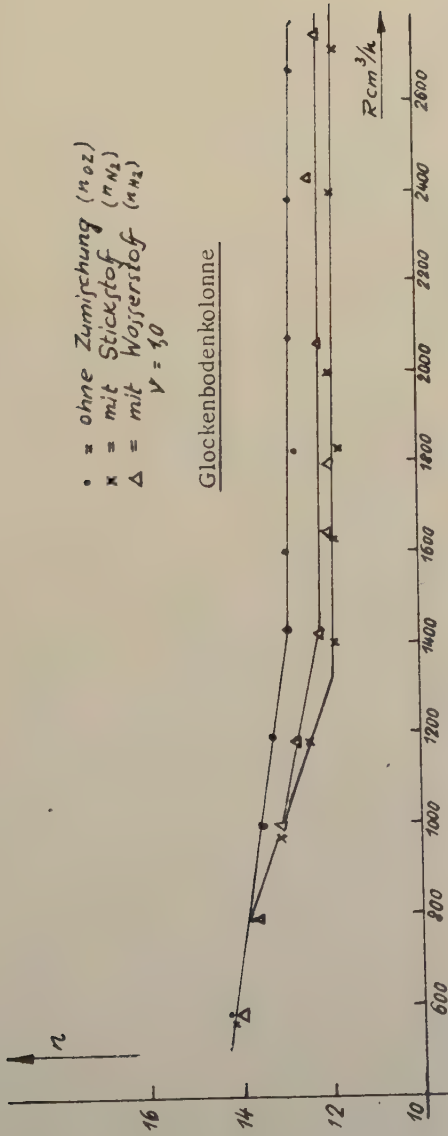


Bild 5 Theoretische Bodenzahl mit und ohne Inertgaszumischung bei verschiedener Belastung.



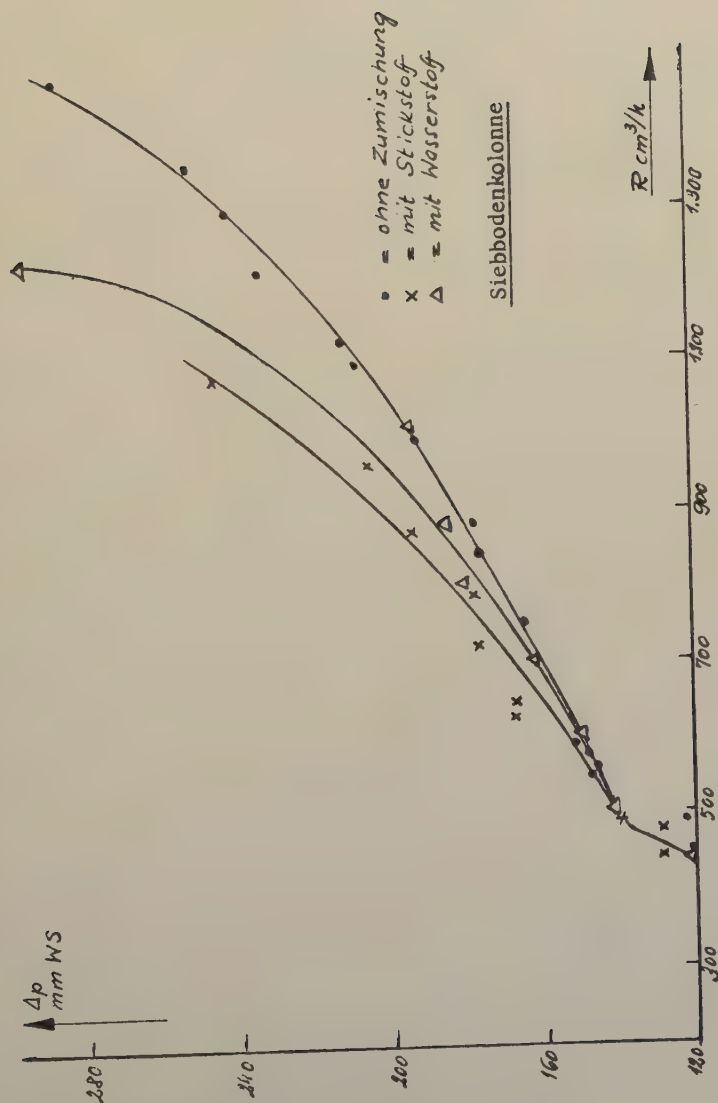


Bild 6 Druckverlust



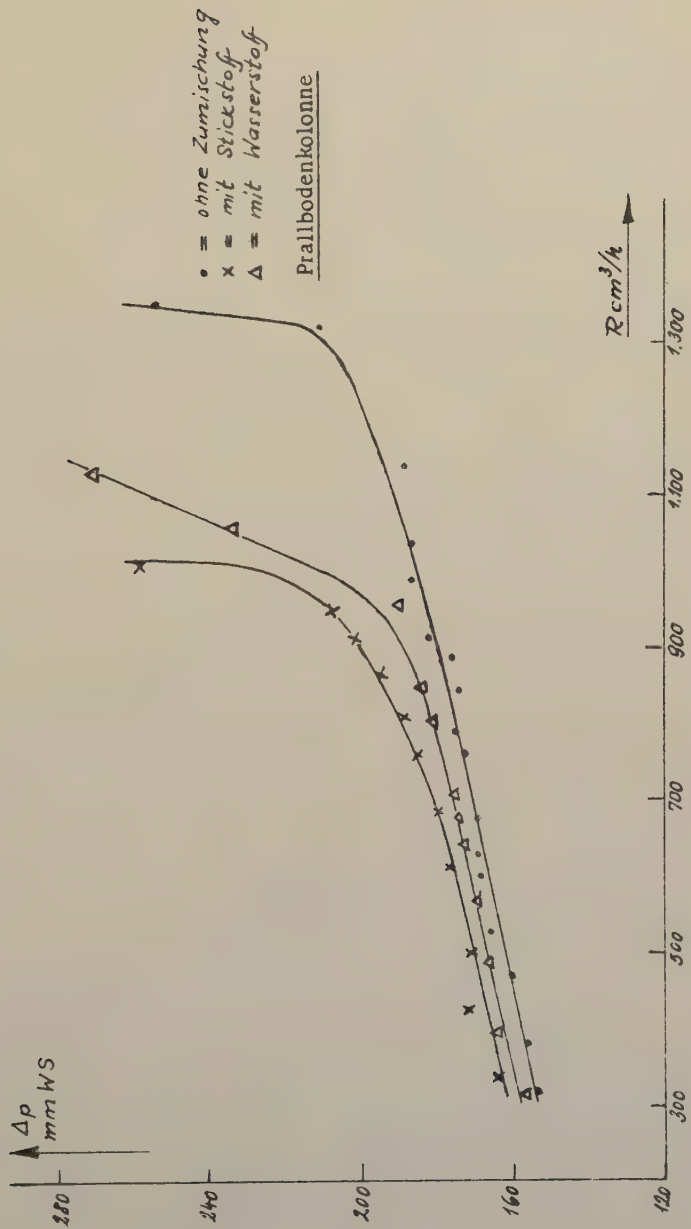


Bild 7 Druckverlust



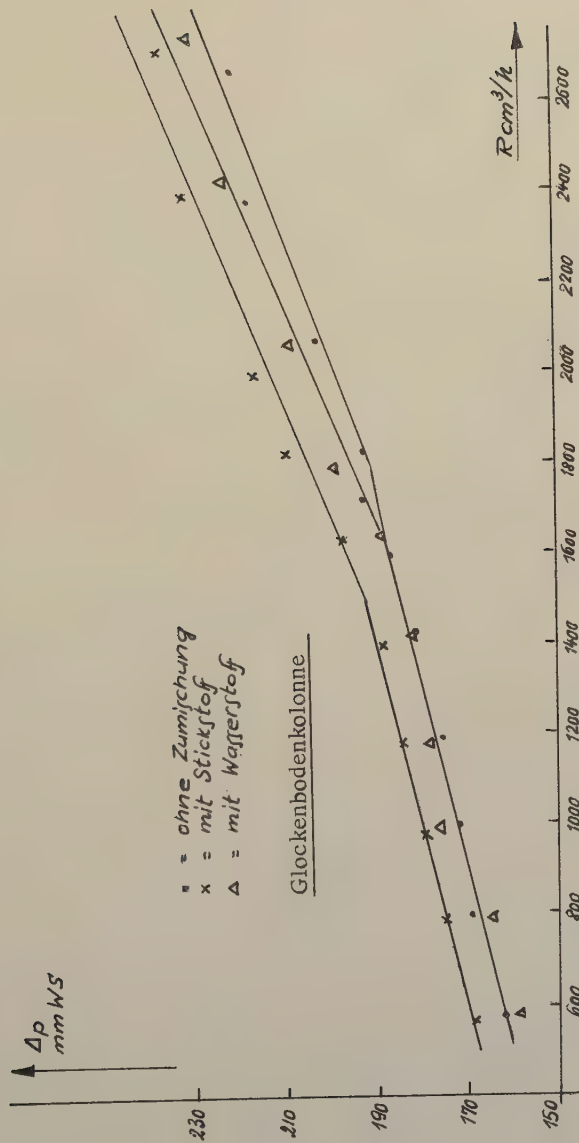


Bild 8 Druckverlust



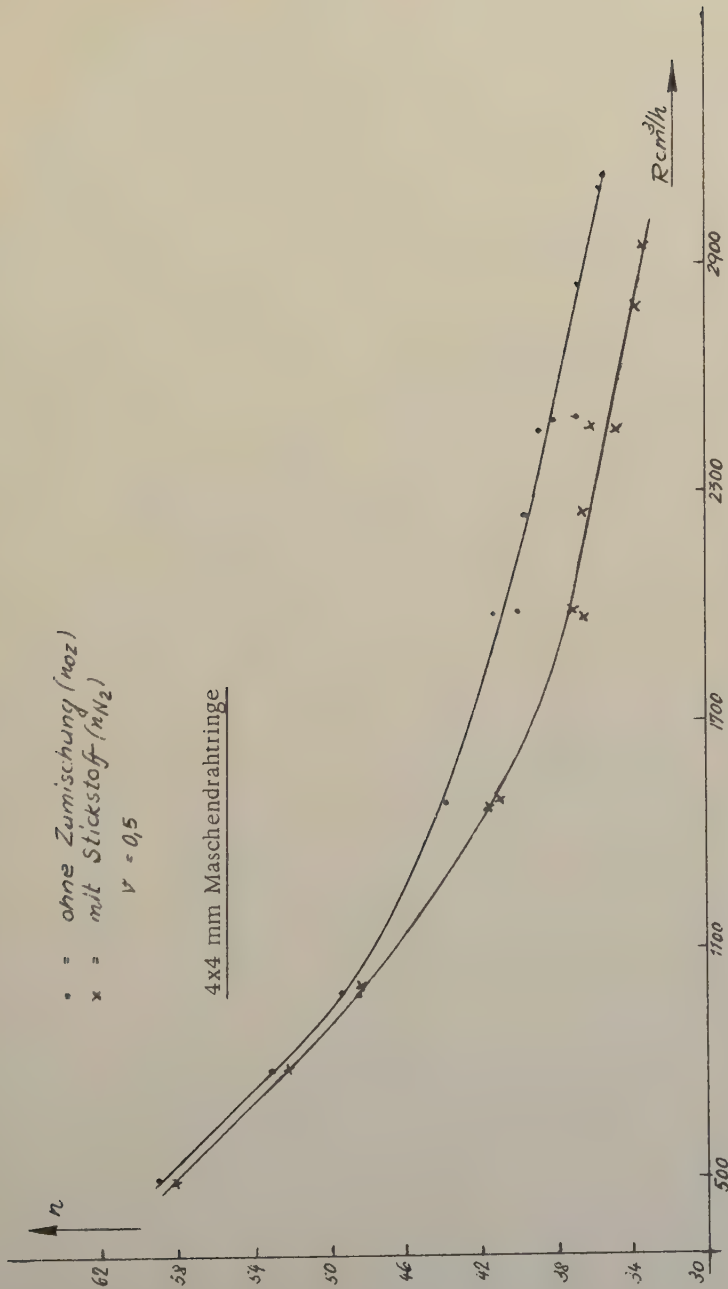


Bild 9 Theoretische Bodenzahl mit und ohne Inertgaszumischung bei verschiedener Belastung



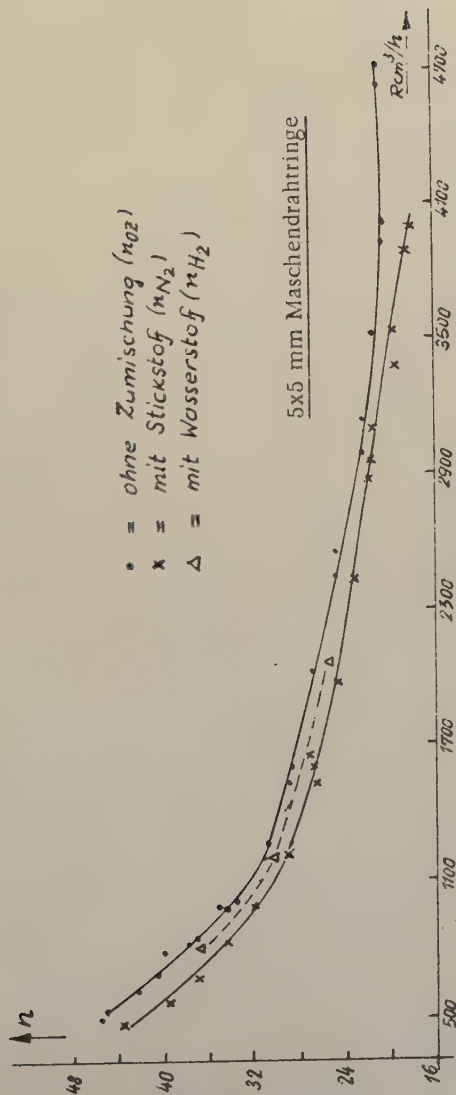


Bild 10 Theoretische Bodenzahl mit und ohne Inertgaszumischung bei verschiedener Belastung



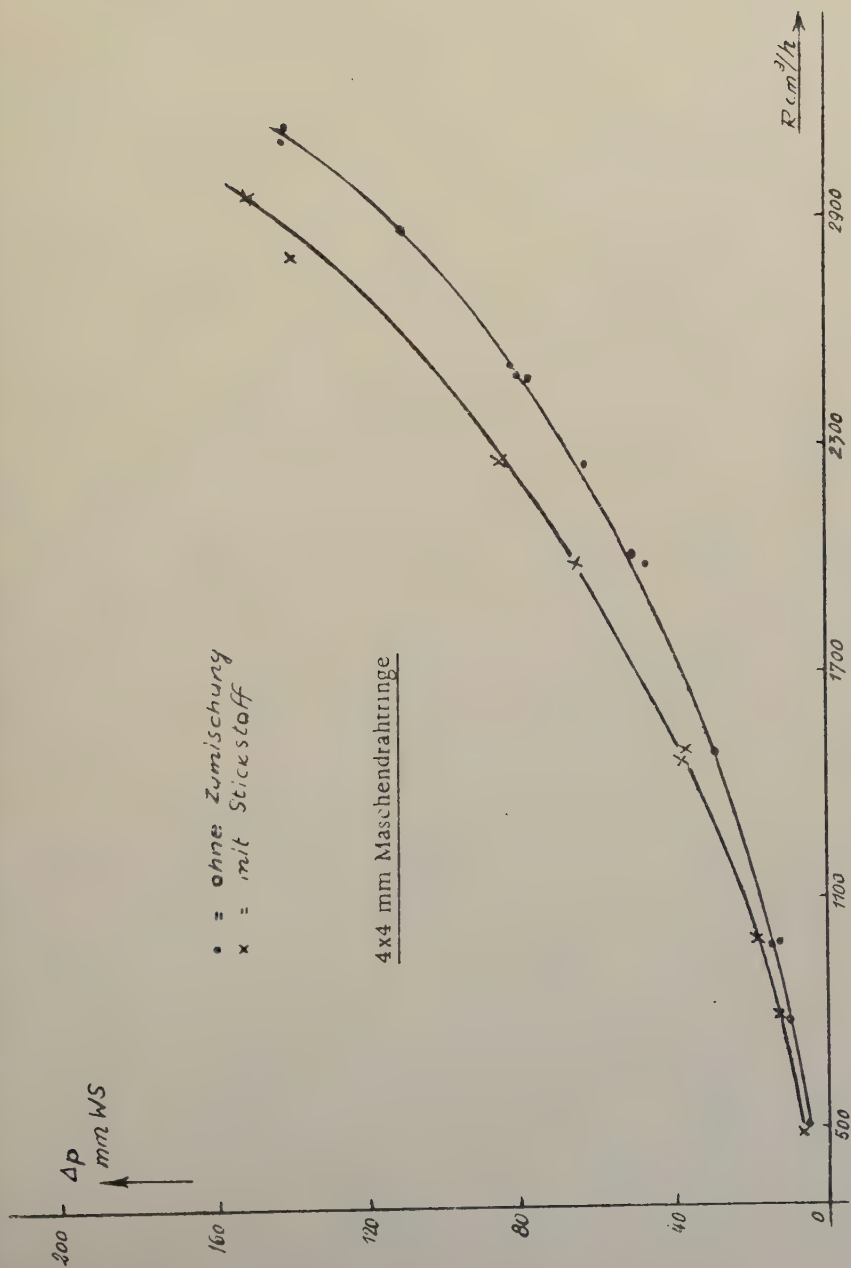


Bild 11 Druckverlust



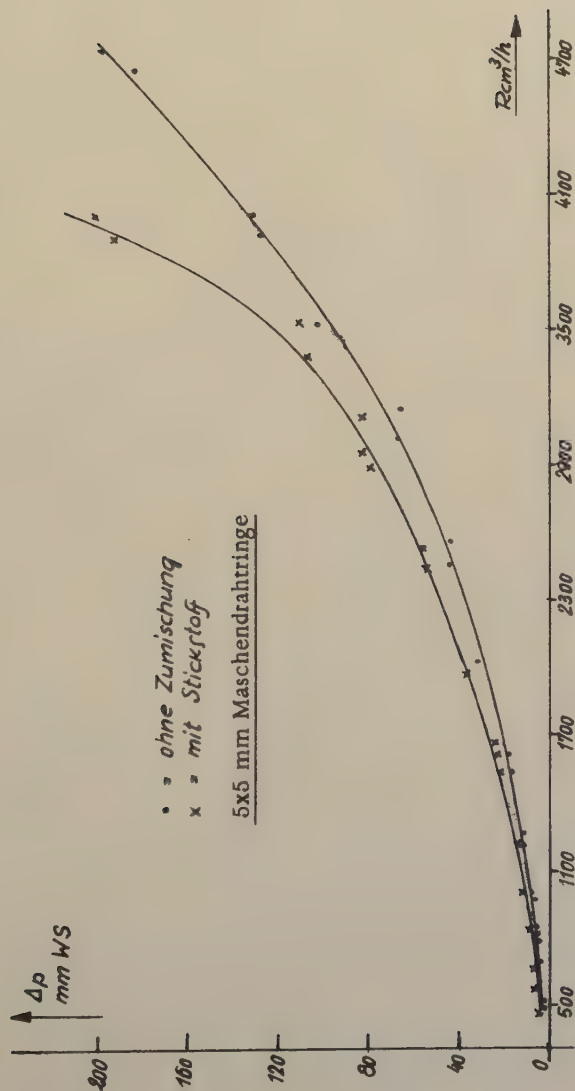


Bild 12 Druckverlust



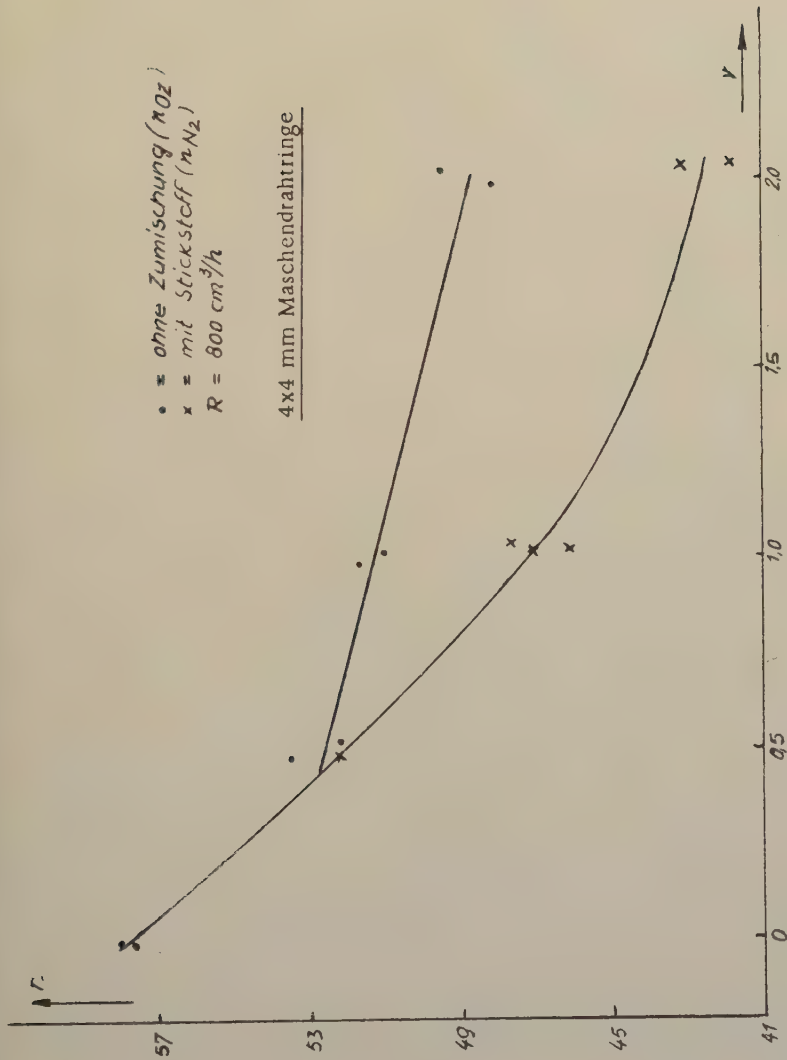


Bild 13 Theoretische Bodenzahl mit und ohne Inertgaszumischung bei verschiedenem  
 Zumischungsverhältnis



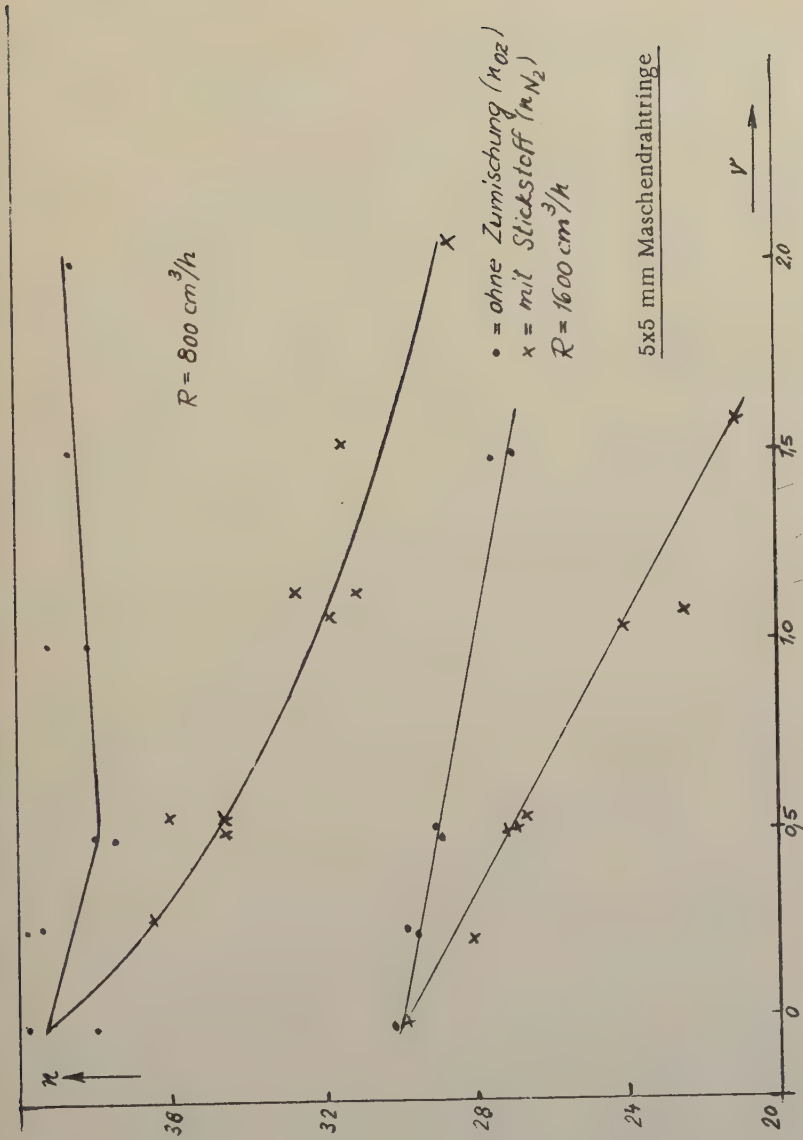


Bild 14 Theoretische Bodenzahl mit und ohne Inertgaszumischung bei verschiedenem Zumischungsverhältnis



## VI. Diskussion

### 1. Ermittlung der Phasenwiderstände bei Bodenkolonnen.

Die Widerstandsverteilung wurde nach der für Füllkörperkolonnen entwickelten Gleichung berechnet.

Wie bereits erwähnt, ist bei diesen die Voraussetzung, dass die Inertgaszmischung die gegenseitige Beeinflussung der Dampf- und Flüssigkeitsphase nicht ändert, mit guter Näherung erfüllt. Der Dampf strömt hier an dem auf der Füllkörperoberfläche ablaufenden Flüssigkeitsfilm ohne wesentliche hydrodynamische Wechselwirkung vorbei.

Bei Bodenkolonnen wird dagegen der Dampfstrom zum Zweck des Stoffaustausches durch die Flüssigkeit hindurchgeleitet. Dabei soll gerade die hydrodynamische Wechselwirkung zwischen den Phasen die Voraussetzungen für raschen Stoffaustausch schaffen: kurze Transportwege in beiden Phasen, infolge möglichst guter gegenseitiger Durchdringung; konvektiven Stofftransport in beiden Phasen. Es kann deshalb nur an Hand der experimentellen Ergebnisse festgestellt werden, ob die genannte Voraussetzung hinreichend erfüllt ist.

Die Tabellen 3-5 geben den relativen Widerstandsanteil der Dampfphase am Gesamtwiderstand ( $a = (HTU)_d / (HTU)_{gd}$ ) an, errechnet aus den in den Bildern 3-5 (S. 18-20) wiedergegebenen Daten.

Tabelle 3

Bodenzahl  $n$  und Widerstandsverteilung  $a$  für die Siebbodenkolonne

| R    | $n_{O_2}$ | $n_{N_2}$ | $n_{H_2}$ | $a_{N_2}$ | $a_{H_2}$ |
|------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|
| 500  | 15.6      | 14.7      | 15.3      | 0.31      | 0.26      |
| 600  | 16.1      | 14.35     | 15.45     | 0.62      | 0.55      |
| 700  | 15.9      | 13.8      | 14.9      | 0.78      | 0.88      |
| 800  | 15.5      | 13.25     | 14.3      | 0.87      | 1.10      |
| 900  | 15.0      | 12.7      | 13.7      | 0.92      | 1.25      |
| 1000 | 14.4      | 11.95     | 13.05     | 1.04      | 1.36      |



Tabelle 4

Bodenzahl n und Widerstandsverteilung a für die Prallbodenkolonne

| R   | $n_{O_2}$ | $n_{N_2}$ | $n_{H_2}$ | $a_{N_2}$ | $a_{H_2}$ |
|-----|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|
| 300 | 15.35     | 15.05     | 15.35     | 0.10      | 0.0       |
| 400 | 14.9      | 14.55     | 14.9      | 0.12      | 0.0       |
| 500 | 14.45     | 14.0      | 14.45     | 0.16      | 0.0       |
| 600 | 14.1      | 13.55     | 14.1      | 0.21      | 0.0       |
| 700 | 13.85     | 13.35     | 13.85     | 0.19      | 0.0       |
| 800 | 13.65     | 13.2      | 13.65     | 0.17      | 0.0       |
| 900 | 13.4      | 13.1      | 13.4      | 0.12      | 0.0       |

Tabelle 5

Bodenzahl n und Widerstandsverteilung a für die Glockenbodenkolonne

| R    | $n_{O_2}$ | $n_{N_2}$ | $n_{H_2}$ | $a_{N_2}$ | $a_{H_2}$ |
|------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|
| 600  | 14.1      | 14.1      | 14.1      | 0.0       | 0.0       |
| 800  | 13.7      | 13.7      | 13.7      | 0.0       | 0.0       |
| 1000 | 13.55     | 13.0      | 13.0      | 0.22      | 0.56      |
| 1200 | 13.2      | 12.3      | 12.65     | 0.37      | 0.57      |
| 1400 | 12.9      | 11.9      | 12.2      | 0.43      | 0.76      |
| 1600 | 12.85     | 11.9      | 12.2      | 0.41      | 0.70      |
| 1800 | 12.8      | 11.85     | 12.2      | 0.41      | 0.65      |
| 2000 | 12.75     | 11.85     | 12.15     | 0.39      | 0.65      |
| 2200 | 12.75     | 11.8      | 12.15     | 0.41      | 0.65      |
| 2400 | 12.7      | 11.8      | 12.15     | 0.39      | 0.60      |
| 2600 | 12.65     | 11.8      | 12.1      | 0.37      | 0.60      |

Ein Vergleich der Druckverluste aller drei Kolonnen (Bilder 6, 7, 8 auf S. 21-23) ergibt, dass die Druckverlusterhöhung unabhängig vom absoluten Wert des Druckverlustes bei Stickstoffzumischung ca. 6% und bei Wasserstoffzumischung 0-3% beträgt.

Die mit Stickstoff- bzw. Wasserstoffzumischung ermittelten Widerstandszahlen weichen, wie aus den Tabellen 3-5 zu entnehmen ist, mehrfach stärker voneinander ab. Man muss jedoch die ungünstige Fehlerfortpflanzung berücksichtigen, die die Werte bei Stickstoffzumischung bis zu  $\pm 0.06$  und bei Wasserstoffzumischung



bis zu  $\pm 0.16$  unsicher macht. Da ferner, wie bereits Seite 7 festgestellt, in erster Linie interessiert, ob der Widerstand entweder weitgehend auf der Dampf- oder Flüssigkeitsseite liegt oder auf beide Phasen verteilt ist, kann die Übereinstimmung zwischen der mit Stickstoff- bzw. Wasserstoffzumischung ermittelten Widerstandsverteilung als hinreichend angesehen werden, um die Anwendung der Inertgasmethode auf Bodenkolonnen zu rechtfertigen.

Bei der Siebbodenkolonne (Tabelle 3) überwiegt der Widerstandsanteil der Dampfphase. Er nimmt mit steigender Belastung zu. Nahe des Flutungspunktes erreicht er fast 100%.

Die mit Wasserstoffzumischung gemessenen Werte liegen ab  $800 \text{ cm}^3/\text{h}$  Rücklauf über 100%. Dies lässt sich — vom Messfehlereinfluss abgesehen — auf das vor dem Fluten ausgeprägter auftretende, und durch die Inertgaszumischung verstärkte Mitreißen von Flüssigkeit auf den jeweils nächsthöheren Boden zurückführen.<sup>8</sup> Eine dadurch bewirkte zusätzliche Verschlechterung der Trennfähigkeit von ca. 0.3 Böden reicht z.B. aus, um bei den Versuchen mit Wasserstoffzumischungen die in Tabelle 3 auftretenden Überschreitungen der 100%-Grenze zu verursachen. Dieselbe Verschlechterung hat bei der Auswertung der Versuche mit Stickstoffzumischung einen sehr viel geringeren Einfluss. Dies zeigt Tabelle 6, in der die a-Werte wiedergegeben sind, die aus den um 0.3 erhöhten Bodenzahlen bei Zumischung für die letzten 3 Reihen der Tabelle 3 berechnet sind.

Tabelle 6

Widerstandsverteilung, für die um 0.3 erhöhten Bodenzahlen

| R    | $n_{\text{O}_2}$ | $n_{\text{N}_2}$ | $n_{\text{H}_2}$ | $a_{\text{N}_2}$ | $a_{\text{H}_2}$ |
|------|------------------|------------------|------------------|------------------|------------------|
| 800  | 15.5             | 13.55            | 14.6             | 0.73             | 0.81             |
| 900  | 15.0             | 13.0             | 14.0             | 0.78             | 0.94             |
| 1000 | 14.4             | 12.25            | 13.35            | 0.90             | 1.04             |

Bei der Prallbodenkolonne (Tabelle 4) liegt der Hauptwiderstand im ganzen Belastungsbereich fast vollständig in der flüssigen Phase.

Bei Wasserstoffzumischung tritt innerhalb der Messgenauigkeit keine Verschlechterung der Trennfähigkeit ein, so dass sich dafür bei allen Belastungen a-Werte gleich Null ergeben.

Bei der Glockenbodenkolonne (Tabelle 5) liegt der Phasenwiderstand bei niedriger Belastung (bis  $800 \text{ cm}^3/\text{h}$  Rücklauf) völlig auf der Flüssigkeitsseite. Dann macht sich ein zunehmender Widerstandsanteil der Dampfphase bemerkbar. Ab  $1200 \text{ cm}^3/\text{h}$  Rücklauf ist die Widerstandsverteilung nahezu belastungsunabhängig.



Der Widerstandsanteil der Dampfphase beträgt ca. 40%, wenn man sich auf die weniger für Messfehler anfälligen Stickstoffdaten bezieht.

Zusammenfassend lässt sich feststellen:

1. Die Inertgasmethode von SIZMANN und STUKE<sup>2</sup> ist auch bei Bodenkolonnen zur Bestimmung der Widerstandsverteilung brauchbar.
2. Die Widerstandsverteilung ist je nach der Bodenkonstruktion verschieden. Bei gebräuchlichen Bodenkolonnen ist jede Widerstandsverteilung möglich: Widerstand jeweils ganz auf einer Seite bzw. auf beide Phasen verteilt.
3. Die bisher übliche Annahme, der Übergangswiderstand in Bodenkolonnen liege grundsätzlich völlig auf der Dampfseite, ist nicht zutreffend.

## 2. Widerstandsverteilung bei Maschendrahrtringen.

Wie bereits in der Einleitung erwähnt, hat SIZMANN<sup>3</sup> festgestellt, dass bei 1500 cm<sup>3</sup>/h Rücklauf der Hauptwiderstand bei 4x4 mm Maschendrahrtringen vollkommen auf der Flüssigkeitsseite und bei den 5x5 mm Maschendrahrtringen ganz auf der Dampfseite liegt. Da diese Maschendrahrtringe aus demselben Material bestehen und sich nur in ihren Abmessungen unterscheiden, ist dieses Ergebnis überraschend. Es war daher von Interesse ihr Verhalten über den ganzen Belastungsbereich zu untersuchen.

Die aus den Messergebnissen (Bilder 9 und 10 auf S. 24, 25) berechneten Widerstandsverteilungen sind in den Tabellen 7 und 8 wiedergegeben.

Tabelle 7

Bodenzahl n und Widerstandsverteilung a für 4x4 mm Maschendrahrtringe

| R    | n <sub>oZ</sub> | n <sub>N<sub>2</sub></sub> | a <sub>N<sub>2</sub></sub> |
|------|-----------------|----------------------------|----------------------------|
| 500  | 58.8            | 58.1                       | 0.06                       |
| 700  | 54.7            | 54.1                       | 0.06                       |
| 900  | 50.6            | 50.2                       | 0.04                       |
| 1000 | 48.8            | 48.4                       | 0.08                       |
| 1500 | 43.8            | 41.1                       | 0.61                       |
| 2000 | 40.7            | 37.3                       | 0.84                       |
| 2500 | 38.3            | 35.1                       | 0.84                       |
| 3000 | 36.1            | 33.0                       | 0.87                       |



Tabelle 8

Bodenzahl n und Widerstandsverteilung a für die 5x5 mm Maschendrahringe

| R    | $n_{O_2}$ | $n_{N_2}$ | $a_{N_2}$ |
|------|-----------|-----------|-----------|
| 500  | 45.3      | 42.0      | 0.42      |
| 700  | 40.2      | 37.1      | 0.45      |
| 900  | 35.8      | 33.3      | 0.40      |
| 1000 | 33.7      | 31.7      | 0.34      |
| 1200 | 31.3      | 29.5      | 0.33      |
| 1500 | 29.4      | 27.3      | 0.72      |
| 2000 | 26.9      | 24.8      | 0.78      |
| 2500 | 24.7      | 23.1      | 0.64      |
| 3000 | 22.8      | 21.5      | 0.56      |
| 3500 | 21.3      | 19.8      | 0.70      |

Der untersuchte Belastungsbereich beginnt bei 500 cm<sup>3</sup>/h Rücklauf und erstreckt sich bis zum Flutungspunkt.

Bei den 4x4 mm Maschendrahringen liegt dieser bei 3100 cm<sup>3</sup>/h für die Destillation ohne Zumischung und bei 3000 cm<sup>3</sup>/h für die Destillation mit Stickstoffzumischung.

Die 5x5 mm Maschendrahringe fluten ohne Zumischung bei 4700 cm<sup>3</sup>/h und mit Stickstoffzumischung bei 4000 cm<sup>3</sup>/h.

Die Trennfähigkeit, ausgedrückt durch die Anzahl theoretischer Böden, ist bei 4x4 mm Maschendrahringen wesentlich höher als bei den 5x5 mm Maschendrahringen.

Bei den 4x4 mm Maschendrahringen (Tabelle 7) liegt der relative Anteil des Widerstandes der Dampfphase am Gesamtwiderstand von 500 bis 1000 cm<sup>3</sup>/h Rücklauf ganz auf der Flüssigkeitsseite, während ab 1000 cm<sup>3</sup>/h Rücklauf der Anteil der Dampfphase stark überwiegt.

Bei den 5x5 mm Maschendrahringen (Tabelle 8) ist die Widerstandsverteilung weniger von der Belastung abhängig. Beide Phasen haben etwa den gleichen Widerstand.

Beim Flutungspunkt wird der Widerstandsanteil der Dampfphase grösser als 100%. Hier ist die Voraussetzung fehlender gegenseitiger Beeinflussung der Phasen nicht mehr erfüllt.

Die relative Erhöhung des Austauschwiderstandes in der Dampfphase durch die Stickstoffzumischung ist u.a. vom Strömungszustand in der Füllkörperschüttung



abhängig (siehe Gleichung 9b und 9c, Bild 1). Wie in Kapitel IV ausgeführt, gibt die Veränderung des Druckverlustes mit steigender Belastung Aufschluss über den Strömungszustand.

In Bild 15 sind die Messergebnisse von Bild 11 und 12, (S. 26, 27) Druckverlust  $\Delta p$  gegen Rücklauf R, doppelt-logarithmisch aufgetragen.

Die folgende Tabelle 9 gibt einen Überblick über die im untersuchten Belastungsbereich auftretenden Steigungswerte  $f$  der resultierenden Gerade, d.h. die Exponenten von  $v$  bzw. R.

Tabelle 9

Verhalten der Dampfströmung ohne Zumischung (Destillationsdruck 480 mm Hg) und mit Stickstoffzumischung ( $v = 0.5$ ) für 4x4 mm und 5x5 mm Maschendrahringe.

| 4x4 mm Maschendrahringe |           |           | 5x5 mm Maschendrahringe |           |           |
|-------------------------|-----------|-----------|-------------------------|-----------|-----------|
| R                       | $f_{O_2}$ | $f_{N_2}$ | R                       | $f_{O_2}$ | $f_{N_2}$ |
| 500 - 1000              | 1.35      | 1.43      | 500 - 1300              | 1.25      | 1.25      |
| 1000 - 2300             | 1.90      | 1.92      | 1300 - 3500             | 1.90      | 1.93      |
| 2300 - Fluten           | 2.40      | 2.40      | 3500 - Fluten           | 2.85      | 4.3       |

Die Dampfströmung in der Füllkörperschicht ist demnach bei niedriger Belastung bis  $1000 \text{ cm}^3/\text{h}$  (4x4) bzw.  $1300 \text{ cm}^3/\text{h}$  Rücklauf (5x5) als laminar anzusehen.

Bei höheren Belastungen wird sie turbulent. <sup>+)</sup>

In der Nähe des Flutungspunktes wird der Wert von  $f$  grösser als 2. Dies deutet darauf hin, dass hier eine starke hydrodynamische Wechselwirkung zwischen Flüssigkeits- und Dampfströmung herrscht.

Der Vergleich der Exponenten  $f$  in der Tabelle 9 zeigt, dass die Werte für Stickstoffzumischung gleich gross oder grösser sind als die ohne Zumischung. Gleichbleibende  $f$ -Werte bedeuten, dass hier die Inertgaszumischung keine zusätzliche Beeinflussung der flüssigen Phase verursacht. Die geringe Erhöhung der  $f$ -Werte durch die Stickstoffzumischung weist auf eine etwas veränderte Wechselwirkung zwischen Dampf- und Flüssigkeitsphase hin.

<sup>+)</sup>  REED und FENSKE<sup>9</sup> ermittelten im turbulenten Gebiet Steigungswerte  $f = 1.8-2.0$   
BRAUER<sup>10</sup> fand einen Wert von  $f = 1.78$ .



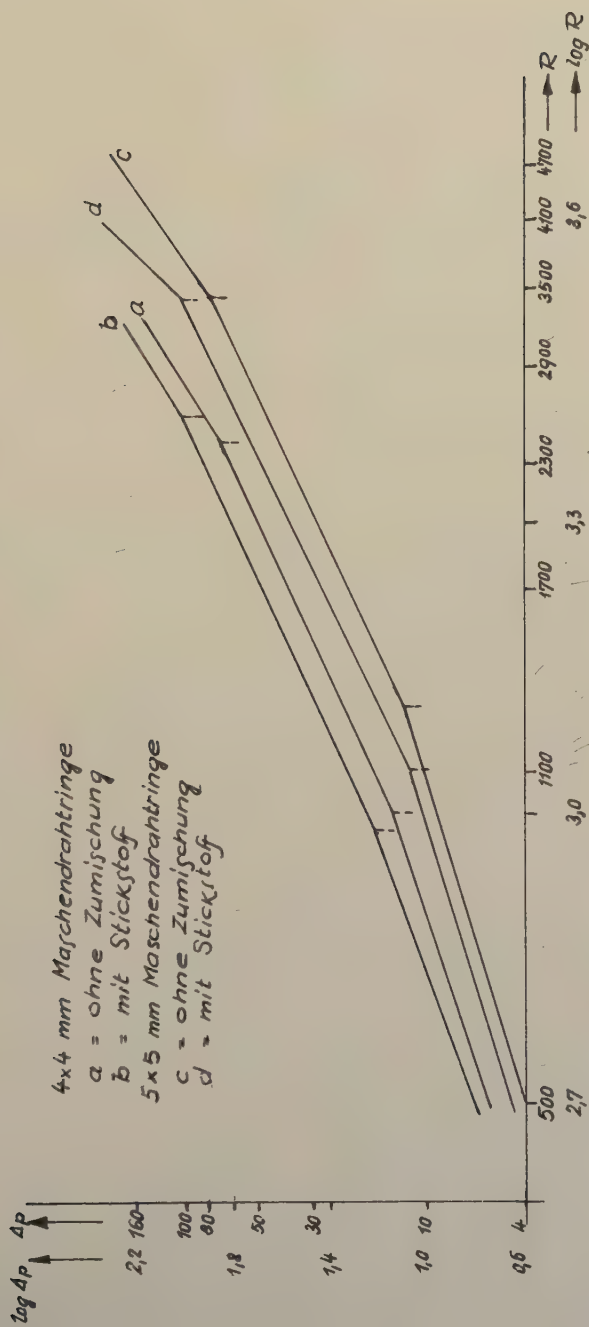


Bild 15 Doppellogarithmische Darstellung des Druckverlustes für 4x4 und 5x5 mm Maschendrahtlinge



Die Ergebnisse (Tabelle 7 und 8) zeigen, dass sich mit dem Wechsel des Strömungszustandes auch die Widerstandsverteilung verändert.

In den Tabellen 10, 11 und 12 sind die bei verschiedenen Zumischungsverhältnissen und jeweils konstanter Belastung (siehe Bild 13 und 14, Seite 28, 29) ermittelten Widerstandsverteilungen mitgeteilt.

Tabelle 10

Widerstandsverteilung für 4x4 mm Maschendrahringe bei 800 cm<sup>3</sup>/h  
Rücklauf (laminare Dampfströmung).

|     | $n_{oZ}$ | $n_{N_2}$ | $a_{N_2}$ |
|-----|----------|-----------|-----------|
| 0.5 | 52.6     | 52.2      | 0.04      |
| 1.0 | 51.4     | 47.2      | 0.24      |
| 2.0 | 48.7     | 42.5      | 0.20      |

Tabelle 11

Widerstandsverteilung für 5x5 mm Maschendrahringe bei 800 cm<sup>3</sup>/h  
Rücklauf (laminare Dampfströmung).

|     | $n_{oZ}$ | $n_{N_2}$ | $a_{N_2}$ |
|-----|----------|-----------|-----------|
| 0.3 | 38.7     | 36.3      | 0.59      |
| 0.5 | 37.9     | 34.8      | 0.48      |
| 1.0 | 38.1     | 32.2      | 0.49      |
| 1.5 | 38.4     | 30.3      | 0.48      |
| 2.0 | 38.6     | 28.8      | 0.45      |

Tabelle 12

Widerstandsverteilung für 5x5 mm Maschendrahringe bei 1600 cm<sup>3</sup>/h  
Rücklauf (turbulente Dampfströmung).

|     | $n_{oZ}$ | $n_{N_2}$ | $a_{N_2}$ |
|-----|----------|-----------|-----------|
| 0.3 | 29.4     | 28.0      | 0.73      |
| 0.5 | 29.0     | 26.8      | 0.76      |
| 1.0 | 28.0     | 24.0      | 0.85      |
| 1.5 | 27.0     | 21.4      | 0.97      |



Verändertes Zumischungsverhältnis bedeutet veränderte Destillationstemperatur ( $v = 0.5$ , mittlere Kolonnentemperatur =  $116^{\circ}\text{C}$ ;  $v = 1.0$ , mittlere Kolonnentemperatur =  $107^{\circ}\text{C}$ ;  $v = 2.0$ , mittlere Kolonnentemperatur =  $95^{\circ}\text{C}$ ) und damit veränderte Stofftransport- und Strömungseigenschaften. Der Charakter der Widerstandsverteilung wird dadurch — wie aus den Tabellen 10, 11 und 12 zu ersehen ist — nicht wesentlich geändert.

Aus Bild 15 und Tabelle 9 ergibt sich, dass die Dampfströmung ohne Inertgaszumischung bei  $800\text{ cm}^3/\text{h}$  Rücklauf laminar erfolgt. Da eine Inertgaszumischung die hydrodynamischen Eigenschaften der Dampfphase ändert, braucht bei gleicher Belastung und insbesondere höherem Zumischungsverhältnis die Dampfströmung nicht mehr laminar zu erfolgen. Dass bei den untersuchten Zumischungsverhältnissen der laminare Strömungscharakter erhalten bleibt, ergibt sich folgendermaßen:

Das Kriterium für das Strömungsverhalten unter gegebenen Bedingungen ist der Wert der Reynolds'schen Zahl,  $Re = v \varrho D / \eta$ . Für zwei verschiedene Belastungen bei sonst gleichen Verhältnissen ( $\varrho$ ,  $D$ ,  $\eta$  konstant) gilt:  
 $Re_1/Re_2 = v_1/v_2 = R_1/R_2$ . Der Index 1 bezeichnet die Re-Zahl an der Umschlagstelle laminar turbulent ( $R_1 = 1000\text{ cm}^3/\text{h}$  Rücklauf für die  $4 \times 4\text{ mm}$  Maschendrahringe;  $R_1 = 1300\text{ cm}^3/\text{h}$  Rücklauf für die  $5 \times 5\text{ mm}$  Maschendrahringe; siehe Tabelle 9), der Index 2 beziehe sich auf die Belastung  $R_2 = 800\text{ cm}^3/\text{h}$  Rücklauf ohne Zumischung. Dann gilt also:

$$\frac{Re_1}{Re_2} = 1.25 \text{ für } 4 \times 4 \text{ mm Maschendrahringe}$$

$$\frac{Re_1}{Re_2} = 1.62 \text{ für } 5 \times 5 \text{ mm Maschendrahringe}$$

Die Änderung der Re-Zahl durch Inertgaszumischung bei konstanter Temperatur, abhängig vom Zumischungsverhältnis, ist Bild 16 (Seite 39) zu entnehmen<sup>6</sup>. Für den grössten Zumischungswert ( $v = 2.0$ ) ergibt sich, unter Berücksichtigung der Zähigkeitsänderung des Dampfes auf Grund der mit der Zumischung veränderten Destillationstemperatur ( $\eta \sim \sqrt{T}$ ):

$$\left( \frac{Re_{v=2}}{Re_{v=0}} \right)_{R=800} = 1.16$$

Da die Stickstoffzumischung bei der Belastung  $R = 800\text{ cm}^3/\text{h}$  die Re-Zahl weniger ändert als in den zuerst berechneten Verhältniswerten, bedeutet dies, dass die Dampfströmung im untersuchten Zumischungsbereich laminar bleibt.



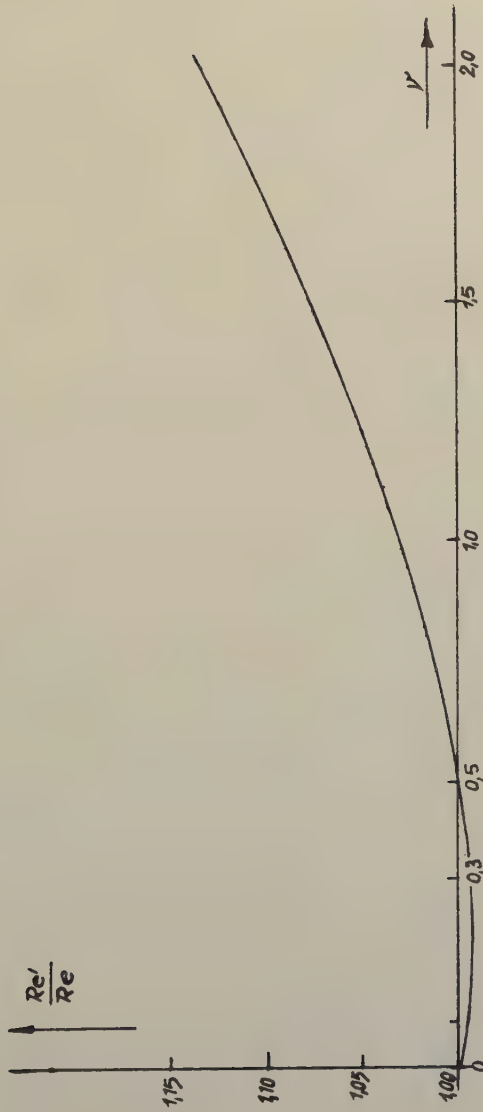


Bild 16 Relative Änderung der Reynolds'schen Zahl für verschiedenes Zumischungsverhältnis



Die aus unterschiedlichen Inertgaszumischungen (Wasserstoff und Stickstoff) ermittelten Widerstandsverteilungen, bei sonst gleichen Verhältnissen (5x5 mm Maschendrahringe,  $\nu = 0.5$ , experimentelle Daten siehe Bild 10) sind in Tabelle 13 wiedergegeben.

Tabelle 13

Widerstandsverteilung aus verschiedenen Inertgaszumischungen  
(Stickstoff und Wasserstoff,  $\nu = 0.5$ ) für 5x5 mm Maschendrahringe

| R    | $n_{O_2}$ | $n_{N_2}$ | $n_{H_2}$ | $a_{N_2}$ | $a_{H_2}$ |
|------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|
| 800  | 37.9      | 34.8      | 36.8      | 0.48      | 0.62      |
| 1200 | 31.3      | 29.5      | 30.6      | 0.33      | 0.47      |
| 2060 | 26.6      | 24.6      | 25.7      | 0.75      | 0.86      |

Die Übereinstimmung der  $a$ -Werte ist im Rahmen der Messgenauigkeit befriedigend. (Bei  $\nu = 0.5$  ist der Einfluss der Messfehler verhältnismässig gross, da dann vor allem bei Wasserstoffzumischung das Verhältnis  $n / n'$  ziemlich nahe bei 1 liegt; siehe Gleichung 10).

Die Versuche ergeben zusammengefasst folgendes:

1. Die 4x4 mm und 5x5 mm einfach gewickelten Maschendrahringe zeigen in ihrem Verhalten keine grundsätzlichen Unterschiede. Bei niedriger Belastung, im laminaren Bereich, liegt der Hauptwiderstand auf der Flüssigkeitsseite: bei den 4x4 mm Maschendrahringen beträgt der Flüssigkeitswiderstand ca. 100%, bei den 5x5 mm Maschendrahringen ca. 60%. Bei turbulenter Dampfströmung liefert die Dampfphase bei den zwei untersuchten Füllkörperabmessungen den Hauptwiderstand: 4x4 mm Maschendrahringe ca. 85%, 5x5 mm Maschendrahringe ca. 75%.
2. Bei verändertem Destillationsdruck (veränderte Destillationstemperatur) und sonst gleichen Verhältnissen blieb in den untersuchten Fällen der Charakter der Widerstandsverteilung erhalten.



## VII. Zusammenfassung

Es wurde untersucht, ob eine von SIZMANN und STUKE für Füllkörperkolonnen entwickelte Methode zur Bestimmung der Widerstandsverteilung auf die Phasen auch für Bodenkolonnen geeignet ist. Versuche mit einer Siebboden-, Glockenboden- und Prallbodenkolonne zeigten, dass diese Methode hier ebenfalls zur Ermittlung der Widerstandsverteilung brauchbar ist.

Die Widerstandsverteilung auf die Phasen ist bei Bodenkolonnen je nach der Bodenkonstruktion und Belastung unterschiedlich. Der Stoffaustauschwiderstand liegt entweder völlig auf einer Seite oder verteilt sich auf beide Phasen. Die früher allgemein übliche Annahme, der Stoffaustauschwiderstand liege bei Bodenkolonnen grundsätzlich in der Dampfphase, ist also nicht zutreffend.

Versuche mit Füllkörperkolonnen, 4x4 mm und 5x5 mm einfach gewickelte V2A-Maschendrahringe, ergaben, dass der Stoffaustauschwiderstand bei den 4x4 mm Maschendrahringen im laminaren Bereich überwiegend auf der Flüssigkeitsseite liegt; bei den 5x5 mm Maschendrahringen ist die flüssige Phase mit ca. 60% Widerstandsanteil beteiligt. Bei hohen Belastungen, turbulente Dampfströmung, befindet sich der Stoffaustauschwiderstand bei beiden Füllkörperabmessungen hauptsächlich auf der Dampfseite (4x4 mm ca. 85%, 5x5 mm ca. 75%).



### VIII. Literaturhinweise

- 1) Stuke, Chemie-Ingenieur-Technik 25 (1953) 677
- 2) Sizmann u. Stuke, Chemie-Ingenieur-Technik 27 (1955) 669
- 3) Sizmann, Dissertation, München 1956
- 4) Fenske, Ind.Eng.Chem. 24 (1932) 482
- 5) Chilton u. Colburn, Ind.Eng.Chem. 27 (1935) 255
- 6) Die Bilder 8 und 16 sind korrigierte Ausführungen der Diagramme  
4, 1 und 2 der Dissertation von Herrn Dr. R. Sizmann, die dieser freund-  
licherweise zur Verfügung gestellt hat.
- 7) Hawkins u. Brent Ind.Eng.Chem. 43 (1951) 2611
- 8) z.B. Kirschbaum, Destillier- und Rektifizierttechnik, Berlin (1950) S. 236 ff.
- 9) Reed u. Fenske, Ind.Eng.Chem. 42 (1950) 654
- 10) Brauer, Chemie-Ingenieur-Technik 29 (1957) 520



## Lebenslauf

Am 1. August 1930 wurde ich, Gottfried Emil Grämer, als Sohn des Verlegers Emil Grämer und seiner Ehefrau Anna geb. Franke in München geboren.

Von 1937 bis 1940 ging ich in die Volksschule in Wessling Obb., dann bis 1941 in die Übungsschule der Lehrerbildungsanstalt München-Pasing. Daran anschließend besuchte ich die Oberrealschule München-Pasing, an der ich 1950 die Reifeprüfung ablegte.

Im Wintersemester 1950/51 studierte ich an der Universität München Physik, ab Sommersemester 1951 Chemie; legte im Juni 1953 die Diplomchemiker-Vorprüfung und im Februar 1956 die Diplomchemiker-Hauptprüfung ab.

Im Physikalisch-chemischen Institut der Universität München arbeitete ich bei Herrn Priv.-Doz. Dr. B. Stuke bis Februar 1957 an meiner Diplomarbeit und danach an der vorliegenden Arbeit.





